

(19) 日本国特許庁 (JP)

## (12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号

特表2001-508919

(P2001-508919A)

(43) 公表日 平成13年7月3日(2001.7.3)

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	FI	テコード* (参考)
H 0 1 M	8/02	H 0 1 M	8/02 E
	8/00		8/00 Z
	8/04		8/04 K
	8/06		8/06 A
審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 55 頁)			
(21)出願番号	特願平10-531296	(71)出願人	ホッカデイ, ロバート, ジー. アメリカ合衆国, 87544 ニューメキシコ, ロスアラモス, アリゾナ アベニュー 3025
(86) (22)出願日	平成10年1月2日(1998.1.2)	(72)発明者	ホッカデイ, ロバート, ジー. アメリカ合衆国, 87544 ニューメキシコ, ロスアラモス, アリゾナ アベニュー 3025
(85)翻訳文提出日	平成11年7月6日(1999.7.6)	(74)代理人	弁理士 丹羽 宏之
(86)国際出願番号	PCT/US98/01693		
(87)国際公開番号	WO98/31062		
(87)国際公開日	平成10年7月16日(1998.7.16)		
(31)優先権主張番号	08/779, 106		
(32)優先日	平成9年1月6日(1997.1.6)		
(33)優先権主張国	米国 (US)		

最終頁に続く

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 マイクロ燃料電池電気パワーバック用表面レプリカ燃料電池

## (57) 【要約】

一つのミニチュア燃料電池システムは燃料電池の基板として多孔性プラスチック膜を使用する。費用効率的無孔電極あるいはイオンとしての水素のみを透過する電解質間フォイルである。新しい電極はアルコール燃料電池を効果的に方向づける。それは電解質を通して触媒を無力化するアルコール拡散を遮断する。化合物電極は真空蒸着法およびスラリーにより形成される。それは現在バッテリーで電力を供給されている用途に電力を供給するため再充填バッテリーおよび電力用エレクトロニクスを組み込まれた小型燃料電池システムのプリント回路設計に導く。アルコール燃料を直接利用するために、新しい燃料電池は単位質量当りより大きいエネルギーと単位容量当りより大きいエネルギーを持つ。これはエネルギー使用者にとって従来のバッテリーよりもより便利で環境にもより害が少なくまた費用も少なくて済む。

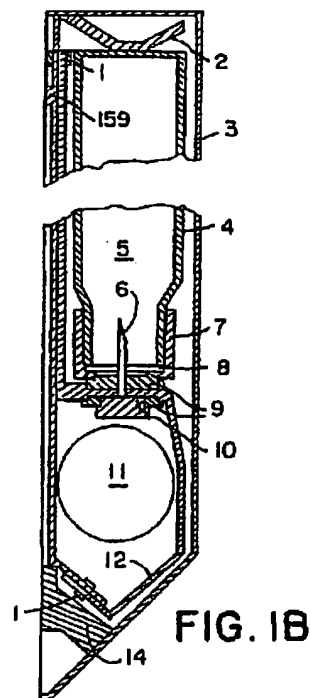


FIG. 18

**【特許請求の範囲】**

1. 酸素側と燃料側を持つ中心膜、膜の燃料側と酸素側に配置された電極を含む一つの燃料電池装置であって、ここで各電極が更に、中心膜に蒸着された第1燃料触媒フィルム層、触媒フィルム層に蒸着された金属フィルム層、および金属フィルム層に配置された疎水性フィルム層、触媒フィルム層と中心膜の間の間隙部に配設された電解質、電極の間に差し挟まれた水素透過性無孔金属膜、第1水循環を持つ中心膜、燃料側の電極上部に配置された燃料循環調節膜、第1水循環および調節膜上部に配置され燃料側の電極にシールされた燃料チャンネルフローマニホールド、燃料マニホールドと第1水循環調節膜の間の領域に燃料を送達するために燃料マニホールドに接続された燃料入口、酸素側の電極下部に配置された第2水循環調節膜、第2水循環調節膜下部に配置され酸素側の電極にシールされた酸化剤ガスマニホールド、および酸化剤ガスを送達するために酸化剤マニホールドに接続された酸化剤ガス入口、水素電極に接続された第1電気接触子および酸素電極に接続された第2電気触し、ならびに電池の外縁部のまわりに伸びまたそれに、接続されたシーリングリムを含む燃料電池装置。
2. 請求の範囲第1項に記載の装置であって、ここで中心膜が多孔誘電膜であることを特徴とする装置。
3. 請求の範囲第1項に記載の装置であって、更に燃料電池に取り付けられる燃料ボトルを含むことを特徴とする装置。
4. 請求の範囲第1項に記載の装置であって、更に電池を囲むハウジングを含むことを特徴とする装置。
5. 請求の範囲第1項に記載の装置であって、更に電気エネルギーを送達するために電極に取り付けられたエネルギー源を含むことを特徴とする装置。
6. 請求の範囲第5項に記載の装置であって、ここでエネルギー源が電圧調節エレクトロニクスであることを特徴とする装置。
7. 請求の範囲第5項に記載の装置であって、ここでエネルギー源がバッテリーであることを特徴とする装置。
8. 請求の範囲第1項に記載の装置であって、ここで中心膜が繊維で強化される

ことを特徴とする装置。

9. 請求の範囲第1項に記載の装置であって、ここで中心膜が少なくとも2個の膜を含むことを特徴とする装置。

10. 請求の範囲第3項に記載の装置であって、ここで燃料ボトルが燃料電池との燃料接続を実行するためのニードルインサートを含むことを特徴とする装置。

11. 請求の範囲第3項に記載の装置であって、更に燃料ボトルから蒸発マニホールドに燃料を吐出するための蒸発マニホールドを含むことを特徴とする装置。

12. 請求の範囲第4項に記載の装置であって、更に膜の一つの側に電極を含み、また膜の折り重ねが燃料側および酸素側のため、更に燃料電池に形成されるように互いに対向して電極を配置するためであることを特徴とする装置。

13. 請求の範囲第12項に記載の装置であって、更に膜の折り重ねに差し挟まれた電解質と膜を含むことを特徴とする装置。

14. 請求の範囲第12項に記載の装置であって、更に膜の折り重ねに差し挟まれた電解質を含むことを特徴とする装置。

15. 請求の範囲第12項に記載の装置であって、更に膜の折り重ねに差し挟まれた膜を含むことを特徴とする装置。

16. 請求の範囲第2項に記載の装置であって、更に電解物性を高めるために多孔誘電性基板膜に顕微鏡的幾何学形成法を含むことを特徴とする装置。

17. 請求の範囲第1項に記載の装置であって、更に種の幾何学的設計あるいは化学的性質に基づき、イオン輸送に関して異なった分子種を選択的に遮断するために電解質に差し挟まれた追加の部材を含むことを特徴とする装置。

18. 請求の範囲第1項に記載の装置であって、ここで燃料が水素搬送化合物であることを特徴とする装置。

19. 請求の範囲第1項に記載の装置であって、ここで燃料が燃料電池電極により電気触媒的に使用される水素搬送化合物であることを特徴とする装置。

20. 請求の範囲第18項に記載の装置であって、ここで燃料が燃料電池電極に到達する前に改質されることを特徴とする装置。

21. 請求の範囲第1項に記載の装置であって、ここで燃料電極と酸素電極の間

に差し挟まれた水素透過無孔金属膜が燃料電極に電気接続されることを特徴とする装置。

22. 請求の範囲第1項に記載の装置であって、ここで燃料電極と酸素電極の間に差し挟まれた水素透過無孔金属膜が酸化剤電極に電気接続されることを特徴とする装置。

23. 請求の範囲第1項に記載の装置であって、更に多孔基板上に多重電極と電解質層を持つ電極を含むことを特徴とする装置。

24. 請求の範囲第1項に記載の装置であって、更に電池の電气的分離のためにフィルムの表面に蒸着物を含むことを特徴とする装置。

25. 請求の範囲第24項に記載の装置であって、ここで蒸着物がインキジェットプリンティング蒸着物を含むことを特徴とする装置。

26. 請求の範囲第24項に記載の装置であって、ここで蒸着物が塗料を含むことを特徴とする方法。

27. 請求の範囲第24項に記載の装置であって、ここで蒸着物が化学蒸気蒸着、写真製版、真空蒸着あるいは電気化学蒸着よるなるグループから選択される方法により蒸着される蒸気を含むことを特徴とする装置。

28. 請求の範囲第1項に記載の装置であって、更に電極のパルス清浄化のため、燃料電池の性能を維持するため、また燃料電池の同一または対向極性内で電圧を変更するために、燃料電池に電気接続された電圧調節エレクトロニクスを含むことを特徴とする装置。

29. 請求の範囲第1項に記載の装置であって、更にバッテリーに適合する形状およびバッテリーの現存する用途に付合する電气的形状を持つ燃料電池を含むことを特徴とする装置。

30. 請求の範囲第1項に記載の装置であって、ここで燃料電池が内部に燃料を持ちまた外部に空気を持つ薄い袋であること

を特徴とする装置。

31. 請求の範囲第30項に記載の装置であって、更に排出ガスが拡散し燃料ガ

スが保持されることを可能にするために袋上に援護膜を含むことを特徴とする装置。

32. 請求の範囲第1項に記載の装置であって、ここで燃料電池が少なくとも2個の背中合わせの燃料電池アセンブリーを持つことを特徴とする装置。

33. 請求の範囲第2項に記載の装置であって、ここで燃料ボトルが燃料の取り替え可能密封アンプルであることを特徴とする装置。

34. 請求の範囲第2項に記載の装置であって、更に交流、任意波動関数、および定常電圧を含む望ましい電圧と電流の特性を産出するように、燃料電池の電圧と電流産出を調節するために燃料電圧に接続されたエレクトロニクスを含むことを特徴とする装置。

35. 請求の範囲第1項に記載の装置であって、更に無孔金属膜により分離された少なくとも2個の異なった電解質を含むことを特徴とする装置。

36. 請求の範囲第1項に記載の装置であって、ここで無孔金属膜が基板の孔に栓をするために多孔基板に蒸着される材料の少なくとも1個のフィルムを含むことを特徴とする装置。

37. 請求の範囲第1項に記載の装置であって、ここで元素の周期率表からの少なくとも1個の遷移元素を含むことを特徴とする装置。

38. 請求の範囲第1項に記載の装置であって、更に燃料電極

を形成する少なくとも2個の電極を含み、それぞれは基本電極および表面レプリカ電極を含み、電極はスパッタリング、真空蒸発、粉体インクスプレー、ゼログラフィー、低圧ガス蒸気蒸着、化学蒸気蒸着、電気めっき、写真製版、あるいは同時蒸着材料の蒸着技術により形成されることを特徴とする装置。

39. 請求の範囲第1項に記載の装置であって、ここで燃料電池がエレクトロニクス製品を駆動するために適合されることを特徴とする装置。

40. 請求の範囲第39項に記載の装置であって、ここでエレクトロニクス製品がセル電話、ポータブルラジオ、ポータブルコンピュータ、ビーパー、ポータブルオーディオ設備、補聴器、医療用機器、あるいはポータブルエレクトロニクスよりなるグループから選択されることを特徴とする装置。

4 1. 請求の範囲第3 6 項に記載の装置であって、ここで多孔性基板物質が横方向へのブロッティングよりも線引インクと溶媒を垂直に使用することにより物質の平面に対して垂直に平行した多孔を持つことを特徴とする装置。

4 2. 請求の範囲第4 1 項に記載の装置であって、ここでインクを持つ物質が溶媒で粉体であることを特徴とする装置。

4 3. 請求の範囲第4 1 項に記載の装置であって、ここで物質が基板に送達された後に電極フィルムに変化する材質を含むことを特徴とする装置。

4 4. 請求の範囲第1 項に記載の装置であって、ここで電解質が電解質を通じる横方向伝導を防ぐため、また電気短絡を防ぐために平行にされることを特徴とする装置。

4 5. 請求の範囲第1 項に記載の装置であって、ここで燃料電池が異なったポテンシャルを持つ単一膜上で並んでいる非二極性燃料電池シリーズ電池を含むことを特徴とする装置。

4 6. 請求の範囲第4 5 項に記載の装置であって、ここで電解質が横方向に影響する燃料電池電極性能から無孔膜ピンホール欠陥漏れを閉じ込めるために平行にされることを特徴とする装置。

4 7. 請求の範囲第1 項に記載の装置であって、更に燃料電池に入る空気を加湿加熱するために水熱対向流熱交換器を含むことを特徴とする装置。

4 8. 請求の範囲第1 項に記載の装置であって、ここで電極がバルク導体金属の使用を最適化するために先細厚みを持つことを特徴とする装置。

4 9. 請求の範囲第1 項に記載の装置であって、更に燃料タンクから液体燃料を吸上げる灯芯を含み、灯芯が燃料を蒸発させ燃料電池で燃料を凝縮することを特徴とする装置。

5 0. 請求の範囲第1 項に記載の装置であって、ここで燃料が直接炭化水素電気触媒酸化のためまた水素を燃料電池に放出するために水と炭化水素の化学量的混合物を含むことを特徴とする装置。

5 1. 請求の範囲第3 1 項に記載の装置であって、ここで燃料がメタノールと水の1 : 1 混合物を含み、またここで排出二酸化炭素製品が二酸化炭素透過性でメ

タノールと水には不透過である膜を通してガスとして存在することを特徴とする装置。

52. 請求の範囲第1項に記載の装置であって、更に選択され

だ分子種を排除し他のものの通過を可能にするために燃料電池電極に近接して選択的透過膜を含むことを特徴とする装置。

53. 請求の範囲第1項に記載の装置であって、更に選択された分子種を排除し多のものの通過を可能にするためガスマニホールドの部分として形成された選択的透過膜を含むことを特徴とする装置。

## 【発明の詳細な説明】

## マイクロ燃料電池電気パワーパック用表面レプリカ燃料電池

## 発明の背景

燃料電池は電解質、電極および触媒の存在下でガスあるいは液体を反応させることにより化学エネルギーを電気エネルギーに変換する。従来の特許番号第4, 673, 624号およびレプリカ燃料電池特許出願番号第08/531, 378号は高価な触媒を有効に使用したやすく大量生産される燃料電池を形成する方法を記述する。電気触媒における最近の進歩はアルコール燃料に直接かつ効果的に作用する触媒を生産している。小型でコンパクトな燃料電池システム設計が今では経済的に実行可能である。

合衆国特許番号第5, 364, 711号および第5, 432, 023号は「OA（オフィス・オートメーション）機器、オーディオ機器、およびラジオ機器」を作動するミニアチュア燃料電池を記述する。これらの特許はミニアチュア燃料電池および燃料電池を構築する技術の集合を使用する利点を記述する。基本的には、2件の特許は液体燃料と電解質を燃料電池に誘導し過剰の水を燃料から除去する灯芯を使用する。低出力燃料電池の投入燃料および水分のウィッキングには4個の基本的問題がある。第一はメタノール燃料を燃料電池に硫酸溶液として送達することであり、メタノールは単一膜型燃料電池で非二極電池を短絡させるリスクに遭遇する。第二の問題は単位領域当り低出力運転および低湿度環境において水分除去よりも水分

保持ならびに燃料電池の再使用問題がしばしば起こることである。

水分除去ウィッキングシステムは燃料電池電極周辺の水分を安定化するのに有用であるけれども、それは過剰にある時にのみ過剰水分を除去する。低出力の適用では、電解質での水分の保持および水分バランスの維持が問題であり、それを除去することではない。更に凝縮水を多孔ガス電極から燈芯に移すメカニズムは記述されていない。ウィッキングシステムだけでは、液体である水との物理的接触あるいは燃料電池の微細構造からウィッキング面への水蒸気の輸送についての何か他のメカニズムが存在しない限り、水分を取り除くことはできないであろう



。従来のガス拡散電極は電極を疎水性物質でパックする。

特許出願番号第08/531, 378号はガスマニホールドの親水性外表面への蒸気相輸送を記述する。また特許出願番号08/531, 378号では界面張力勾配が凝縮水を望ましい位置に移動するよう誘導するために使用される。第三の問題は合衆国特許第5, 364, 711号および合衆国特許第5, 432, 023号に記述されるアセンブリが多くの変った部品を機械的に組み立てるシステムを示すことである。複雑なアセンブリは大量生産には力を貸さない。第四の問題はプロトン伝導電解質を通じるメタノール燃料交差が均質電解質および多孔性電極を用いて低出力運転のための妥当な燃料効率を達成するために適切にアドレスできないことである。

米国特許第4, 931, 168号ではガス透過性電極がメタノール燃料と接触する。この目的は燃料電池電極に構築される

二酸化炭素気泡の発生を防ぐことである。ガス透過樹脂および触媒粒子電極は反応物質とイオンが電極を出入りすることを可能にする。ガス透過膜はメタノール燃料交差を遮断する手段を提供しない。

燃料電池は小さな器具に使用することが望ましい。エイチパワー・コーポレーションはビデオレコーダーを駆動する25ワット出力燃料電池を生産するためにアナリティック・パワー・コーポレーションと共に作業を続けている。加圧金属水酸化物水素シリンダーあるいは分解水素化物が燃料供給で 사용되는ものと期待された。

この不利な点はこれらの燃料電池が二極重畳電池であり燃料供給が便利ではないことである。二極燃料電池スタックは組立てには費用がかかりまた電気伝導多孔ガス電子セパレーターを必要とする。電池の重畳は余分の労働が必要である。通常少くとも4個のガス気密シールがすべての電池にありまたシリーズスタックには2ガス量が存在する。セル電話などの小さな用途には6ボルト出力が必要であり、各個々の燃料電池は平均0.5ボルトである。それは非相似物質の間で48個のガスシールに翻訳する。電池の加湿環境下で機械接触を経由する電気接触は著しい腐蝕と摩耗の問題を起こす。成分のコストは電池を形成するために必要

な大量の高価な材料によりはねあがる。

室温でメタノールの直接電気触媒反応用のPt/Ruなどの新しい二元触媒の到来と共に新しいパラメータが燃料電池のために公開される。高エネルギー密度で社会的に許容される燃料を流す直接供給される燃料電池が可能となる。もし燃料電池が

室温常圧で作動することができるとすると、燃料電池の寸法あるいは出力サイズを制約する熱あるいは複雑目盛計数は存在しない。進化の次の段階は触媒コストを低減し、燃料電池アセンブリを費用効率的にすることである。

#### 発明の概要

この発明は特許番号第4, 673, 624号および同時係属出願表面レプリカ燃料電池第08/531, 378号に記載の燃料電池を使用し、携帯用エレクトロニクスのために電力を提供する目的で再充電可能なバッテリーなどの蓄電装置を持つあるいは持たない小型電力供給体を形成することである。出力調整装置は望ましい電気出力を電池に送れるように燃料電池に組み込まれることができる。エレクトロニクス制御装置は直流電圧出力を調節し、定電圧を流すためにエレクトロニクス切換えを使用し一方より高次の電流のために燃料電池の電圧を落とし、あるいは任意の交流波形電流を供給しかつ定期的電氣的に燃料電池触媒を活性化する。このアセンブリはそれを防護し用途に適合させるためにコンテナにパッケージされる。燃料と燃料への電気接続部は2個の接続部に減少される。下記のアセンブリでは、電気接続部は電極パターンをより単純に電池内での高電圧テンション領域が起こるのを避けるために分離される。ガス接続部は圧縮取付け具（リベット、ラチェット、あるいはナットおよびボルト接続部）である。これは燃料電池が大量生産でたやすく組立てられるようにする。

非二極性スタッキングでの新しい燃料電池はこれまでの燃料電池の問題を排除し、シールの全数を2個あるいは3個にまで

減少する。機械接触子は2個あるいは3個であり、それは加湿環境から遠ざけられる。小型器具市場では新しい燃料電池設計が電池を速やかに組立て繰返して行

えるようにすることが重要である。

新しい発明の他の特性は表面レプリカ燃料電池が可撓性膜パッケージであるためにそれは周りを保護コンテナで包まれる。燃料電池は電池をコンパクトな量に包装するために波形にされ、一方気流チャンネルをまだ保持する。燃料電池はバッテリー用に設計された多くの用途に適合するために標準バッテリー物理的形状にパッケージされる。

大型出力用途に関しては、電池は通常の電力ガス供給管に沿って重畳される。小型電池と同じように、電気・燃料接続部は共通のものである。

高出力用途に関しては、燃料電池を上昇温度で動かし酸化剤空気を活発に流す方が有利である場合には、新しい発明は燃料電池の温度と高湿度を維持するために、水・熱対向流熱交換器を使用し一方クーラー燃料あるいは酸化剤ガス供給からガスを交換する。熱と水は熱交換器の膜を通して交換される。膜は固体ポリマー電解質で含浸された多孔膜あるいは類似の水透過膜である。典型的な機械強度透過物質に比べて機械強度の高い多孔膜を含浸することにより、透過膜の強度および利用は透過物質の均質膜を使用することで単純に改良される。燃料電池の微細構造では数多くのバリエーションが存在する。例えば燃料電池電極は層状に作られ、また異なった内部電極層が電解質を分離するためにまた電解質交差反応剤あるいは製品の拡散を防ぐ

ために使用される。無孔で水素のみ透過する金属膜が薄層フィルム蒸着金属を持つプラスチック基質の小孔をふさぐことにより形成される。この膜は電極として燃料電池に組み込まれ、あるいは別個に電解質内で使用される。

単純化アセンブリは電極パターンが蒸着した時にそれを遮蔽することで形成され、またイオンミリングは燃料電池間のギャップの汚れを除去するために使用される。燃料電池の配列は燃料電池の一つの配列を折り曲げることで組立てられ、ここで電池相互接続ルート、電池ブレイク、および燃料ならびに酸化剤電極はいずれも膜の一方で作られる。

燃料電池はユニークな特徴を持つ無孔膜電極を用いることにより濃縮メタノール上で運転する。その拡散性を検定される無孔膜電極はそれが水素で水和された

時それ自身を酸素および不活性ガスに密閉するという非常にユニークな特性を持つ。Pd薄層フィルムはそのスパッタフィルム蒸着形態に起因してその中に小さな空隙を持つ。水和が起こる時、パラジウムは膨潤し空隙を埋めるものと考えられる。この密閉特性はまた、パラジウム／プラチナ／パラジウム膜が膜の反対側にあるアルゴンガスで21時間水和された時にも観察された。水素拡散も開始時点での拡散率の17%まで低下した。当初の高い拡散率は空気および酸素に露出された後に回復した。一つの理論は、このシステムで管材材料からの炭化水素は空隙の閉鎖と共にパラジウム触媒部位を無力にしていたということである。

半透過膜電極の特徴は他の燃料電池とは重大な差異を有する。

ミニアチュア燃料電池システムは多孔プラスチック膜を燃料電池の基板として使用する。費用効率的無孔電極あるいは電解質間薄片であり、イオンとしての水素のみを透過する。新電極は直接アルコール燃料電池を効率的に方向づける。それは電解質を通じて無力化されようとするアルコール拡散を遮蔽する。化合物電極は真空蒸着法およびスラリーにより形成される。これは再充填バッテリーおよび現在バッテリーで電力を与えられている電力用向け電力エレクトロニクスに組み込まれている小型燃料電池のプリント回路設計に導く。アルコール燃料を直接利用することにより、新燃料電池は単位質量当たりより高いエネルギーと単位容量当たりより高いエネルギーを持つ。これらはエネルギー利用者にとってより便利であり、従来のバッテリーよりもより環境に危険をもたらさずまた安価である。

この出願の主題はこれまでの最新の出願以降でのレプリカ燃料電池に生じた進歩を加え、レプリカ燃料電池の新規な用途の多くを記載する。決定的な新しい進歩はイオンとしての水素のみを透過する費用効率的無孔電極の更なる発展である。これは代って直接アルコール燃料電池の効率および実用性を増加するが、それは電解質を通して無力化されかけるアルコール拡散を遮断するからである。それは小型アルコール電力燃料電池を実用化する。

小型燃料電池のもっとも明らかな用途はバッテリー、とりわけ再充填バッテリーで現在作動するものである。直接アルコール燃料を利用することにより、燃料電池は単位質量当たりより高いエネルギー、単位容量当たりより高いエネルギーを持

ち、エネ

ルギー利用者にはより便利で、環境にはより無害でまた従来のバッテリーよりもより安価である。

この発明のこれらの更なる他の目的および特性は開示により明らかであり、それは前記および以下の明細書ならびに請求の範囲と図面を含む。

図面の簡単な説明

図1 Aおよび1 Bは再充填バッテリーでセル電話を作動するよう形成された燃料電池の正面および側面断面図である。図1 Aはセル電話内部図である。図1 Bは中心線断面図である。

図2は図1 Bで示される電池のニードル燃料接続部の拡大断面図である。

図3 Aは図1 Aで示される燃料電池の燃料電池と電気接続部との外部ガスマニホールド図である。外部ガスマニホールド層は図3 Bで拡大断面図で示される。

図4 Aは図1 Aおよび1 Bの燃料電池の空気電極層蒸着パターンを示す。

図4 Bは蒸着電極の拡大断面図である。

図5 Aは図4 Aの空気電極の下での電解質マトリクス層を示す。

図5 Bは貫通接続部の拡大断面図である。

図5 Cは食刻核粒子飛跡膜基板の拡大板目図である。

図6 Aは図4 Aの空気電極に対向する燃料電極層蒸着パターンを示す。電極蒸着の拡大断面図は図6 Bで示される。

図7 Aは図1 Aおよび1 Bの燃料電池スタックの中心にある燃料マニホールドを示す。

図7 Bは図1 Aの拡大断面図である。

図8 Bは図1 Aおよび1 Bで示されるセル電話電力供給に使用される燃料電池アセンブリの分解斜視図である。

図9は粉体支持触媒、メタノール燃料、無孔電極および表面レプリカ燃料電池電極を使用するこの発明の拡大断面図である。

図10は重畳燃料電池アセンブリの電極蒸着パターンを示す。蒸着物の誇張

された厚み断面図が図10Bで示される。

図11は内部電解質膜を持つ重畳燃料電池の分解斜視図である。

図12は重畳燃料電池アセンブリーの周りに積み上げられたガスマニホールドの分解斜視図である。

図13は液体燃料アンプルをD電池バッテリーの物理的形狀にアセンブルした重畳燃料電池の分解斜視図である。

図14A、14B、および14CはD電池相対的配置の外部垂直水平断面図である。

図15は水・熱交換対向熱交換器を持つ新しい燃料電池発明を示す。

#### 望ましい実施例の詳細な説明

この発明の2個の典型的な実施例が図面で示される。図1乃至図8はセル電話に電力供給する相対的配置を示す。図9は燃料電池の微細構造のレプリカ燃料電池電極との差異を示す。図10乃至14は折り重ね法により形成され標準型D電池の形状に構築された、燃料電池電力パッケージを示す。図15は燃料電池の空気投入がどのように水・熱交換器を使って高い湿度と

温度条件で燃料電池を運転させることができる。

図1Aおよび1Bはセル電話に電力を供給するために再充填バッテリー11を持つプラスチックケース3に構成された表面レプリカ燃料電池12を示す。燃料電池はリベット1とゴムシール9を持つ燃料ニードル6を通じて適切に保持される。電気接触は燃料電池の電気接触子と酸素電極の接触リベット1を通じて行われる。燃料電池パッケージ内で燃料電池12は再充填バッテリー11の周りをラップされる。燃料5は燃料タンクボトル4に含まれる。燃料5は燃料ニードル6を通じて燃料電池12に送られる。燃料補給運転はケース3を開きボトルキャップ7により保持されるゴム膜8に穴をあけた後燃料ボトルを素早く入れる。燃料ボトル4は保持ばね2で適所に保持される。保持ばねはまたセル電話をしっかりとつかむためにはめ込み隆起部159を持つ。この実施例での保持ばね2と陽極14は一体の切断形成された薄板である。陰極13もまた一体構造のものである。この特別な実施例に関して、陽極14および陰

**極 1 3 は モ ト ロ ー ラ ・ マ イ ク ロ タ ッ ク ® お よ び 再 充 填 ヨ ー ク と**

連動するように形成される。電力供給は燃料補給と同じく電気再充填で行われる。

。

図 2 は燃料ニードル接続部の拡大断面図を示す。この図面で燃料 5 で充たされた燃料ボトル 4 は燃料ニードル 6 上の串刺しで示される。運転の際には、燃料 5 はニードル内の導管を通して燃料ニードル 6 に引き込まれる。道管 1 5 は制御された様式で燃料を燃料電池に動かすための燃料灯芯として作用するように充填されあるいは大きさを決められる。燃料が一度燃料ニードル 6 の底部に到達すると、燃料が灯芯を伝いあるいは蒸発して燃料マニホールド 2 2 に入りまた燃料電極 2 1 に送達されるようにニードルの側面には燃料流管接続口 2 7 がある。燃料マニホールド 2 2 を経由する輸送は蒸発および凝縮あるいは燃料マニホールド 2 2 の中心を通しての液体ウィッキングによるものとなる。2 個の燃料電池 1 2 電極 2 0 がここで示されている。それは背中合わせに積み上げられた 2 個の燃料電池 1 2 のシステムである。燃料ボトル 4 の燃料電池 1 2 への締め付けを確実にを行うために、3 個のガスケットが存在する。最初のものはボトルキャップ 7 を燃料ボトル 4 にまた燃料ニードル 6 に締め付けるゴム膜 8 である。第 2 はリベットとじ込み 1 6 で押えられる上部リングガスケット 2 4 である。ガスケットは燃料ニードル 6 および燃料電池 1 2 に対して締め付け、また紙状燃料電池 1 2 の穏やかな機械的型締めとして作用する。第 3 のガスケットは燃料電池 1 2 および燃料電極接触子 2 6 に対して穏やかな機械的型締めと締め付けの他の側を形成する下部ガスケット 2 5 である。電気接触は燃料接触電極 2 6 および接触ワッシャー 2 8 に対して行われる。空気電極 1 9 と共に空気マニホールド 1 8 が電気接触の串刺し点の周りで清浄化される。薄板接触陰極 1 3 が図から電流をとって示される。

図 3 A および 3 B は平面に置かれた時燃料電池 1 2 がどのように見えるかの外部図である。正の空気電気リベット接続部 1 4 が燃料電池領域 3 0 およびリムシール 3 2 の外側で燃料電池 1 2 を型締めしていることが示される。哲学は空気電極接触領域 2 9 を電解質 2 0 から遠ざけておくことである。リベット 3

1はその燃料と電気接続を燃料電池12の中心で行う。燃料電池からの電流は薄層接触子13, 14を通じて外部粗電気接触子に送られる。これらの接触子における工学的挑戦の一つは、燃料電池12の構造を摩耗したり疲労させたりせずに大量金属システムから薄層機械電気燃料電池構造に接続することである。リムシール32熱溶接あるいは膠付けシールである。図3Aでは空気マニホールド30は燃料電池を覆っている。図3Bにおける間にホールドの顕微鏡断面図はテフロン繊維34の外

表面を加湿するナフィオン® 35を持つ拡張されたテフロン構造34を図形で示す。ナフィオン® 35の外表面で、コーティ

ングは水蒸気不透過酸素透過フィルム157である。コーティングは、ナフィオン® が高含水率で拡張する時に開き低含水率

では閉鎖するクラックおよび穴部158を持つ。これは燃料電池の含水率を調節するメカニズムを提供する。この構造はまた電極の表面に凝縮水が積み重ならないようにすると共に、一方では水分が空気マニホールドの外表面に凝縮するようにさせる。凝縮水は空気マニホールドの外表面を伝って吸い出され、あるいは外部空気36に蒸発される。外部領域35は燃料電池に対し湿度調節源を提供する。

図4Aでは、接触リベット14, 31および空気マニホールドが除かれ空気電極パターンのみが示される。空気電極パターン38は多孔プラスチック基板43の上部のマスクを通じて蒸着される。図4Bで示されるように、敷かれる第1層はアル

コール溶媒でナフィオン® 5%の溶液蒸着物としての電解質2

0である（合衆国、19357 ペンシルバニア、メンデン

ホール、P. O. ボクス171、ソリューション・テクノロジー・インコーポレイテッド）。それは乾燥され、表面を荒くするためにイオンミリングされ、プラチナなどの触媒フィルム46のスパッタ蒸着で真空チャンバで被覆される。金など



のバルク導体フィルム47がスパッタ蒸着される。プラズマ重合テフロンなどの疎水性フィルム44は電極の外表面に蒸着される。このシステムで電解質20は疎水性層44により凝縮水から守られ、また空気49電解質界面48は燃料電池電極孔45内で維持される。空気49拡散経路はサブミクロン孔径45を用いて短く保たれる。図1Bで示される燃料電気接続部10は酸素電極47、46、44が燃料接続部40から遮蔽されるために配設される。陽電極接続部14は電解質20を遮蔽し疎水性フィルム44を金接触領域37に留めるために配設される。電解質20もまたイオンミリングにより除かれる。燃料電池間にある分離体42は触媒フィルム46とバルク導体フィルム47の蒸着の間遮蔽される。燃料電池間の分離領域42では電解質イオンミル化され、疎水性フィルム44が蒸着される。燃料電池システムは燃料接続帯40から出かける2個セットの燃料電池39と41を持つ。

図5Aでは、下部にある電解質マトリクス層が示される。出発材料は図5Bおよび5Cで示されるように食刻核粒子トラッププラスチック膜ニュークレポア® 5aなどの多孔膜である。

接触領域51、52、57を通じて、スパッタ蒸着により多孔膜59であるバルク導体を得られる。電解質20が蒸着される前に、貫通蒸着が連続したバルク導体蒸着で次いで膜の孔58

を通じて作業するためのイオンミリングを使用することで創り出される。これは貫通接触領域51、52、57を通じて完成するために膜の両側で行われる。電解質58は浸漬乾燥によ

りアルコール溶媒でのナフィオン® 5%の溶液として蒸着さ

れる。燃料電池ギャップ50はイオンミリングにより電解質20、58を清浄化される。貫通接触部51、52の表面もまたイオンミリングにより電解質20、58を清浄化される。燃料電池領域53、54は図4Aで示されるように燃料電池電極38の電解質で被覆されたままである。

図6Aおよび6Bでは燃料電極蒸着が示される。燃料電池電極領域60は電池

分離ギャップ42で遮蔽される。電気接触子55はバルク金属貫通接触子である。電極の顕微鏡的詳細が断面で示される。燃料電極を形成するために、多孔プラスチック膜基板59の反対側に向かう蒸着物の同一シーケンスが使用される。**ナフィオン® 電解質58は多孔基板59に向けて蒸着さ**

れる。燃料電極パターン60は多孔プラスチック基板59の上部のマスクを通じて蒸着される。敷かれる第1層はアルコール**溶媒でのナフィオン® 5%の溶液蒸着としての電解質20, 5**

8である(合衆国、19357 ペンシルバニア、メンデンホール、P. O. ボクス171、ソリューション・テクノロジー・インコーポレイテッド)。この層は次いで乾燥され、表面を荒くするためにイオンミリングされ、プラチナなどの触媒フィルム63のスパッタ蒸着で真空チャンバで被覆される。金などのバルク導体フィルム62はスパッタ蒸着される。プラズマ重合テフロンなどの疎水性フィルム61は電極の外表面に蒸着さ

れる。このシステムを利用して、電解質58は疎水性層61により凝縮水から保護され、また燃料ガス150電解質界面64は燃料電池電極孔45内に維持される。燃料電極蒸着は貫通接続部51を作るために図5で前に示されるように電解質マトリクス上を被覆される。

図7Aおよび7Bで燃料マニホールドが示される。これは燃料電池12の中心層であり、マニホールド22は2個のセットの燃料電池12に対して押し上げる。第2セットの燃料電池は二重のセットである。顕微鏡的断面図でマニホールド材料は拡張テフロン繊維34などの疎水性材料である。マニホールドの**中心域65はナフィオン® などの被覆で親水性にされる。マニ**

ホールドの外表面66は疎水性である。孔部67が燃料入口に配設される。

図8は燃料電池アセンブリの分解斜視図である。空気電極接触リベット1は空気電極19と一緒に型締めし、電気接触を行うリベットとじ込み16と共に示される。燃料ニードル6は燃料電極21と燃料マニホールド22の中心を貫通し接触ワッシャー28を通じて電気接触を行う。型締め圧およびシーリングは下部ガスケットリング24および上部ガスケットリング25を通じて行われる。貫通

接触子51は空気電極パターン19の後縁部で、次いで燃料電極21の前縁部の縁にわたって示される。接続のこのパターンは単一膜59を通じて「縫われた」望ましい一連の電気接続電流経路を達成する。空気マニホールド23は燃料電池の第1セット68、燃料マニホールド22および燃料電池の第2セット69をサンドイッチ状態にしたこと

を示している。膜の積み重ねは空気マニホールド23の縁部にシールされたリム32で熱シールあるいは膠シールされる。燃料電池アセンブリー12は図1で示される電力供給システムに配置される。

図9は粉体触媒と半透過性電極を持つ表面レプリカ燃料電池電極のハイブリッド設計の分解斜視図を示す。この設計の第1の顕著な特性は3層で形成される半透過性電極である。第1フィルムは水素透過性金属フィルム79であり、これは多孔性物質81の孔部82にプラグ80を形成するためにあるいは固形電解質83への直接のコーティングで広角スパッタ源で蒸着される。一つの例は15ナノメートル径の孔を持つニュークレ

#### **ボア® フィルター膜上の20ナノメートル厚パラジウムフィルム**

ムである。プラチナなどの第2の構造金属フィルム78はパラジウムなどの高度に透過性の金属の多くで生じる水和誘導クラックを緩和するために、水素透過性金属フィルム79に蒸着される。パラジウムなどの第3水素透過性金属フィルム77は構造金属フィルム78上に蒸着される。Pt/Ru/Pdの混合物などである第3金属層は水素イオンを受け入れ可能にする必要があり、アルコール燃料に対して触媒活性でなければならない。

多層構造の力学は、2個の外部金属フィルム77および79が高い水素透過性、水素イオンの高度な凝縮を有し、また水素イオンの界面受容性の高い割合を持つことにある。これらは構造金属フィルム78のどちらの側でも移動性イオン化水素の貯蔵所として役立つ。構造金属フィルム78はそれ自身では水素

イオン受容性の界面率が低く、水素イオンの平衡凝縮も低い、表面コーティング77および78の故で水素イオンの効率的なコンジットとして作用し、またそ

れは水和で破損することはない。半透過性電極を形成する代替的な方法は水素イオンに対し高い透過性を持ち他のイオンに対しては低い透過性を示す金属合金を用いるものであり、これは水素水和で破損せず、またその表面は水素とアルコールに対して触媒活性である。

水素イオンのみ透過性の電極77, 78, 79の表面に、Pt/Ruコート活性炭素（バルカンX-72炭素上にPt 20重量%、Ru、10重量%、合衆国01801マサチューセッツ、ウォーバーン、西カミングパーク 400、エレクトロケム・インコーポレイテッドより）などの粉体触媒粒子76が、アルコールに溶解された電解質ナフィオン® 5%の溶液

（合衆国、19357 ペンシルバニア、メンデンホール、P. O. ボクス171、ソリューション・テクノロジー・インコーポレイテッド）と共にスラリーインクとして蒸着される。蒸着スラリー76は乾燥され、イオンミリングされ、外部透過膜77への触媒粒子76の電気接続75を高めるために30nmのPt/Ruフィルム74でスパッタ被覆される。30nmPt/Ruフィルム75は、それが水和する時に粒子76を保護し電解質72の拡張の故でアルコール燃料71のための孔部73を持つ。

メタノールと水1:1の混合物として示されるアルコール燃料71は燃料電解質72に拡散し、次いで触媒表面76および77上で触媒クラックを起こし、水素イオン151の純生産を

生じる。水素イオン151は触媒粒子76から、粒子76を通じる拡散による外部透過膜77に、あるいは燃料電解質72に進み次いで透過膜77のいずれかで移動する。メタノールおよび水96のクラッキングから外部透過膜77で形成される水素イオンは透過膜77に拡散する。燃料96から水素イオンを形成する工程で移動する電子152は電橋76, 77, 78を経由して外部電荷に移り酸素電極86, 87, 88, 89に到達する。

燃料を燃料電極75, 76, 78および79に送るために、多孔性疎水性燃料マニホールド70は燃料蒸気のみが電極表面74に達することができるように使用される。燃料マニホールド

ド70は拡張テフロンあるいはマイクロポラス®ポリプロピレン（スリーエム・コーポレーション）などの物質から作られる。

水素イオン151はそれが外部透過性金属77に吸収された後で構造金属78を通じプラグ孔80と電解質83の電解質界面に拡散する。電解質は溶液蒸着ナフィオン®でありそれは燃

料電解質とは化学的に異なるが、その理由はそれが水素イオンのみ透過性電極77, 78, 79により分解されるからである。プラグ孔80と電解質83の界面で水素イオンが電解質

83に入る所である。水素イオンは次いでヌクレポア®フィルター

などの多孔性基板プラスチックの層の電解質充填孔82, 84を通じて移動する。内部多孔膜84にある孔部84は多孔性を最適化するために、伝導性、拡散率、およびシステムコストを最適化するために選択される。水素イオン151が酸素電

極86, 87, 88, 89, 154, 155に到達すると、それは酸素電極86, 88, 89, 154の触媒表面近くの酸素イオン153と結合する。

酸素イオン153は電解質83にある溶解酸素ガス上の触媒86, 88, 89, 155の触媒作用により創出される。水素イオン151と酸素イオン153の結合の最終製品は水94である。製品の水94は電解質83に溶解し、次いで水蒸気94として拡散する。多孔疎水性コーティングは液状水が酸素電極89, 83の外表面で凝縮するのを防ぐために触媒粒子89と電解質83の表面を蒸着される。

酸素電極153, 154は金などの金属導体154のフィルムを多孔性基板81にスパッタ蒸着し、次いでプラチナなどの触媒フィルム155を金属導体154上にスパッタ蒸着することで形成される。電極154, 155および多孔性基板81は

ナフィオン® 83などの電解質で溶液被覆される。

酸素電極86, 87, 88はPtなどの触媒86のフィルム

## をナフィオン® 被覆多孔性基板プラスチック81にスパッタ蒸

着することにより形成される。金などの第2バルク導体金属フィルム87が次いでスパッタ蒸着される。外部触媒面フィルム88はバルク導体フィルム87上でスパッタ蒸着される。燃料電極膜81, 77, 78, 79と内部多孔性84、および酸素電極81, 83, 86, 87, 88とのサンドイッチはナフィオン® 5%溶液と一緒に組み合わされ乾燥される。粒体触媒粒子89は® ナフィオン® 5%溶液のインクスラリーとして

加えられる。疎水性コーティング90はPTFEモノマーの真

空プラズマ重合により蒸着される。このフィルムは空気電極89の表面での液状製品水の凝縮を防ぐために加えられる。イオンミリング段階は電解質83の表面対空気接触91を増やすために加えられる。

表面ピット93保護およびPTFEのグレージング角蒸着により、あるいは単に多孔性フィルム蒸着により、外部電極面89, 93は空気に透過性にされる。燃料電池電極90を押し上げるのは、拡張PTFEなどのような疎水性多孔ガスマニホールド膜92である。燃料電池の水分を調節する2個のフィルムが燃料電池に組み立てられる。第1のものは選択的に酸素に透過性であり酸素電極89, 83の表面に位置する水分の透過性が低いフィルム90である。このフィルムはヌクレポア® フィ

ルターなどの多孔性基板161の表面にわたりポリクロロフルオロエチレンフィルム157のプラズマ重合により形成される。燃料電池の出力は電子152を通じて電荷160全体に送られる。

図10は折り重ねアセンブリ燃料電池を形成するための多孔性プラスチック基板上の蒸着パターンを示す。この実施例において、燃料電極107および空気電極103はヌクレポア®

フィルター膜などの多孔性プラスチック膜97の単一薄板を図9に記載された物質の層でコーティングすることにより形成される。

燃料電池を形成するために4種の一般的な蒸着物がある。第1のものは金などのバルク電極金属蒸着物であり、燃料電極領域107、ラップアラウンド電極106、空気電極領域10

3、陽フリル接触子104およびマスク経由の負フリル接触子101の全てに蒸着される。フリル接触領域104、101はバルク金属端部キャップを持つ指状接触子を形成するために切断98される。これらのバルク電気伝導電極は導電性およびコストを最適化するために厚みを先細にされる。これは電極層105に平行な燃料電池膜97の縁部でもっとも薄く、またラップがアラウンド電極106でもっとも厚い。燃料タブ100もまた燃料に対する不透過性を改良するために大量金属導体で被覆される。燃料タブ100、電池ブレーキ102、およびフリル接触子は照射後またスクレポア材料基板97の食刻前に熱アニーリングにより創り出された膜の不透過性領域である。

燃料電池電極107の第2のコーティングは、前に述べたようにマスクを通じて電極領域にスパッタされ、蒸発されあるいはスプレーされる。

電極の第3セットである空気電極103は、マスクを通じて電極領域にスパッタされ、蒸発されあるいはスプレーされる。

**第4の層はナフィオン®を蒸着された溶液の電解質であり、一**

般に食刻核粒子飛跡膜97の内部多孔性領域全体にわたり含浸される。電解質は燃料電池電極107、および103上に蒸着される。図9は電解質蒸着物の詳細を示す。電解質は蒸着されないか、あるいはフリル接触子103、101、燃料タブ100および電池電気分離帯102からイオンミリングにより除かれる。電池が中心線105に折り重ねられた時、燃料電池リムシール領域は燃料タブ100および燃料電極107のリムの周りを進むことを示している。

図11は内部膜および折り重ねアセンブリーの挿入を示す。

## ナフィオン<sup>®</sup> 含浸ヌクレポア<sup>®</sup> フィルター 109 などの内部多

孔性膜 109 は折り重ね 105 燃料電極 107 および空気電極 103 の間に挿入される。ナフィオン<sup>®</sup> 5% 溶液などの電解質

溶液 108 が燃料電極 107 および空気電極 103 の間に加え  
られる。ナフィオン<sup>®</sup> を持つアセンブリーは乾燥され 80 - 1

10℃の間で硬化される。ラップアラウンド電極 106 は電極折り込み 105 の周りを動かことが示される。フリル接触子 110, 104, 101 は膜のスリット 98 として示される。リムシールは燃料電極 107 および電池ブレーキ 102 の周りを動くものとして示される。燃料入口タブ 100 が示される。

図 12 は空気マニホールド 113 と燃料マニホールド 111 で組立てられた折り込み燃料電池 112 の分解斜視図を示す。空気マニホールド 113 は燃料膜 112 まで押し上げられる拡張 PTFE などのような疎水性空気透過性薄片物質である。燃料マニホールドは拡張 PTFE などの内部多孔疎水性表面および図 7 で示されるように燃料を吸い上げる内部帯 65 を持つ。燃料マニホールドの外表面は燃料および水は不透過であるがポリクロロフルオロエチレン (Kel-F<sup>®</sup>、スリーエム・コーポレーション) などの二酸化炭素は透過性である膜である。燃料マニホールド外表面の二酸化炭素透過性はメタノールおよび他の炭化水素のクラッキングで生じる二酸化炭素製品の出口を提供する。十分に高い二酸化炭素透過性とコスト効率を提供する  
るために、燃料マニホールドの外表面はヌクレポア<sup>®</sup> 膜真空蒸

着ポリクロロフルオロエチレンと硝酸セルロースなどの保護ガ

ス透過性ラッカーコーティングのラミネーションである。燃料マニホールド 111 は燃料電池膜 112 に対して押され、またシステムはリムシール 114 に沿ってポリエステルエポキシでシールされあるいは膠付けされる。

図 13 は標準 D バッテリーの物理的外形に合致するシリンダー状幾何学形状で



の折り重ね燃料電池のアセンブリを示す。燃料電池アセンブリ117は空気マニホールド表面113外装で周りを包まれる。燃料タブ100は燃料ニードルおよび端末キャップ115に穴あけされるように曲げられる。燃料ガスケット116は燃料タブ100の上に配置され、燃料ガスケット118は燃料タブ100の下部に配置される。負のフリルタブ101は屈曲し負の端末キャップ115の内部面に対して片持ばりビームばね接触させる。正のフリルタブ104は屈曲し負の端末キャップ122の内部面に対して片持ばりビームばね接触させる。メタノールと水充填シールされたポリエチレンシリンダーなどの燃料充填燃料タンク119は燃料電池アセンブリ117の内部を摺動する。燃料電池への燃料接続は燃料タンク119の壁が燃料ニードル端末キャップ115で穴あけされた時に行われる。端末キャップ115、122はキャップおよび管に糸通しあるいはねじどめし、誘電管をエンドキャップに膠付けあるいは熱溶着するなどにより誘電管121に付着することにより一緒に保持される。燃料電池117のギャップ130は残され、誘電管121は燃料水準が視覚でチェックできるように透明にされる。誘電管121は空気が流入し製品ガスと蒸気が出るようにその中に形成されたガス抜き穴を持つ。

ガス抜き穴の数と大きさは戦略的に酸素拡散取り入れ口および水分拡散除去率を絞るために使用される。

図14A、14Bおよび14Cは標準D電池物理的形状での組立てられた燃料電池を示す。これらの図は、図14Aで外部側面図、図14Bで中心線を貫通する側断面図、および図14Cで垂直水平断面図が示される。外部図面は長さ5.8cm口径3.3cmである標準D電池バッテリーの主要な寸法を示す。垂直断面図では、正の端末キャップ122はフリル接触子104を通じて燃料電池126と電気接触される。燃料タンク壁124は燃料タンクに心立てと正圧点を提供するために末端アラインメント隆起部123を持つように設計される。アラインメント隆起部123はまた燃料タンクへの注入後に熱密封点になる。燃料タンク124の他の端部では燃料ニードル127の串刺しが心立てアラインメントを提供する。負末端キャップ115は負フリル接触子101を通じて燃料電池に電気接続

される。燃料ニードル127は燃料タンク壁124を貫通し、燃料125に突っ込み、燃料ガスケット118および116で密封される。ニードルを貫通し、燃料電池タブ100まで行く燃料経路メカニズムは、接触ワッシャ28とリベット折り重ね16が使用されないことを除き図2と同じであり、これはそのケースが負電気接続が燃料接続の代りにフリル接続子104を経由して行われるからである。水平断面図では、燃料窓ギャップ130が燃料の水準を便利に視覚でチェックできるように示されている。燃料タンク壁124と誘導管121は燃料チェック計画が作動するように窓ギャップ130域では透明である必要が

ある。空気流ギャップ128は二酸化炭素が拡散で除去されるように燃料タンクと燃料電池126の内部表面との間で残される。空気流ギャップ129は酸素が拡散し水分除去が燃料電池126からガス抜き穴120から出られるように誘導管121と燃料電池外表面126の間で残される。

図15は燃料電池がどのように水熱対向流熱交換器と結合されるかの概略図を示す。それは燃料電池出力水準が活発な空気流に値するほど十分高いかあるいは80℃などの雰囲気条件以上で燃料電池を運転する利点が必要であるかである。熱移動膜139を持つ対向流熱交換器を使用する概要が示される。熱移動膜139は流入空気131と流出空気144の間の熱と水分を伝導する。**水分透過膜139は、ナフィオン®の故で水分透過性であり、またその構造強度を多孔性ヌクレポア®基板から得ているナフィオン®含浸ヌクレポア®のような複合材構造で**

ある。運転に際しては、流入空気131は入口配管140に送風156される。空気は流出空気144で加熱されるために、それは熱交換膜139を通じて143拡散する水分を吸収する。熱と水分は対向並行ガス流141で流入空気140と流出空気142の間で交換される。流入空気131は加熱加湿され空気電極138に到着する。燃料電池136、空気電極138、電解質137、燃料電極134、燃料135、および熱交換システムは断熱132される。

前記の説明は特異的な実施例を含み、それは発明の範囲を制限するものとして

解釈されるものではなく、むしろ望ましい実施例の例示として理解されるべきものである。ナフイオン® 電解質およびヌクレポア® フィルター材料はそれらが周知の性質

を持つために選択された。他の多くの変形が可能である。

#### 微細構造

これまでの特許出願に加えられるべき多くの新しい概念は、炭化水素を使用する、あるいは燃料電池を通じて拡散する不純物を持つ汚れた燃料を単に使用するという問題を解決するべきである。もしメタノールあるいはエタノールなどのこれら炭化水素が酸素電極に拡散するならば、それは酸素電極の性能を低下させ、同じく燃料電池に使用されない燃料の単なる漏れになる。これらの損失を防止する従来の燃料電池の技術は、より厚い電解質を使用し、燃料が酸素電極に到達する前に全ての燃料を使用しようと試みるために十分な高出力密度で燃料電池を運転し、また燃料の濃度を低下させることである。これら3種の技術全てはそれらがアルコールに対する抵抗あるいは他の何かの性能パラメーターの犠牲で不純物拡散率を単に増加させるという問題を持つ。ユニークな解決法は電極上の炭化水素を電気化学的に触媒作用を及ぼし、次いで水素イオンを水素には透過性であるが炭化水素には透過性ではない電極に移動させることである。炭化水素イオンは次いで電極から再び出現し第2の電解質に入り、酸素電極に移る。この計画は2個の外部電極および第3の内部個別拡散電極で形成されるつまり拡散電極は燃料電極もしくは酸化剤電極のいずれかの基層である。炭化水素電極の対象となる特殊なケースはPd/Ta/PdあるいはPd/Pt/Pd炭化水素透過性電極の上に分散されたPt/Ru合金である。TaあるいはPtとして確認された内部支持金属

は解離水素に透過性である遷移金属などの様々な水素透過性物質である。Pd/Ag 77% : 23原子パーセント金属などのもの（水酸化物電解質に適している）。物質の選択はまた電解質との融和性に依存する。電極のPt/Ru側はアルコールおよび硫酸電解質に浸漬される。酸素電極はPt/Ru電極あるいは他の適切な酸素電気触媒金属である。酸素電極は固形ポリマー電解質を使用する。

### 電解質の最適化

3個の特性は多孔性基板の小孔幾何学形状および電解質からくる。第1は燃料電池により期待される性能範囲に関する拡散率に対する電解質伝導性の単なる最適化である。燃料電池を最適化するために、望ましい電流密度が推定され次いで抵抗損対反応物質拡散率が最適化される。最適化の一例は反応物質が拡散により電極に送達される燃料電池である。内部空気ギャップ2.9mm、および燃料電池温度を80℃以上の上昇にさせないようにする目標で冷却される大気で除去される熱は電流密度の限界を約50ミリアンペア/平方センチメートル以下に制限する。電流密度は最新式の固形ポリマー燃料電池（合衆国特許番号第5,234,777号）で約1/50である。かくして支持膜の電解質充填孔は燃料電池を最適のイオン伝導性と反応物質拡散抵抗値に保つために拡散およびイオン伝導流を止めるために使用される。電解質を含み多孔性を減少するメカニズムで、構造は最適性能を維持するように薄くなるため、それは多孔性基板の厚みの二乗に逆比例する率で電解質の全利用に導く。これはナフィオン®などの高価な電解質の使用を減少さ

せ、従って燃料電池のコストも下げる。

第2の特性は食刻核粒子飛跡膜あるいは類似の構造を持つ誘電体の平行する高表面域で組織されることによりナフィオン®

などの固形ポリマー電解質の疑わしい分子アラインメントからくるものである。均質電解質で20倍までの伝導性の向上が期待される。分子種に対する拡散透過性が一定であるなら、それは拡散率向上以上の20倍のイオンを生じることになる。

第3の効果は、もし分子拡散種（例えば水素ガス）の間の平均自由工程が多孔構造の側面チャンネルの寸法と同じかあるいは大きければ単純勾配断面域モデルより拡散率は減少する。拡散特徴は、ベローズパイプのように壁巻き込みがパイプのコンダクタンスに影響する場所には、真空システム間の分子流量拡散にはまり込む。この作用はまたイオンに対して平行伝導行程を、また分子種に対して側

方デッドエンドポケットを提供するように組立てられる。特異的实施例は分子種平均自由行程よりも小さい孔を持つ2個あるいはそれ以上の膜を積み重ねたものであり、ここで膜間ギャップは側面チャンネルとして作用する。あるいはその分子間で分子種平均自由行程の尺度でのシステムに主イオン行程に対する側面チャンネルを単に持つ。ここでの拡散抵抗メカニズムはまた他の混合イオンおよび光起電システム、熱電システム、および熱イオンシステムなどの非イオン拡散システムでも使用される。

#### 折り重ね設計

可撓性単一基板上で燃料電池の全ての電極を形成する非常に単純な構成は折り重ね設計である。この設計では、電池相互接

続ルート、電池電気分離、および燃料電極と酸化剤電極は膜の一方の側で作られる。燃料電池は次いで膜を積み重ねて組立てられる。この設計はまた燃料電池がどのような数の内部電解質

#### **層が挿入されるヌクレポア® フィルターなどの商業利用できる**

均一多孔性基板から形成されることを可能にする。燃料電池構築上の自由度に余裕があることから、それは多孔性を圧縮することにより燃料電池を最適化するのに役立つ。電解質の微細幾何学形状を制御することは燃料電池の性能に大いに益する。内部膜はその幾何学的設計あるいは化学物性によりイオン輸送に際して異なった分子種を選択的に遮断する。

#### 電極の層

燃料電池電極には主要な2個の機能がある。第1は燃料あるいは酸化剤を電気触媒的に処理することであり、第2は燃料電池から電荷に電子を電氣的に誘導することである。これら2個の機能および性質は単一の補足物質：構造を貫通する複雑な電気経路のため低い電気伝導性を持つ高表面域触媒、および最小表面域で平滑表面を持つ高電気誘導性構造、のものに組立てることはそう多くはない。両方の物質の最良のものを持たせる一つの方法は、活性炭粉体で支持される触媒で被覆されたスパッタ蒸着金フィルム電極などのような高表面域触媒と結合した平滑電極層を持つことである。

### 単純マスキング

多孔誘電基板上に燃料電池電極の配列を形成する単純な方法は、マスクパターンを通じて金属および電解液をスパッタし、真空蒸発しあるいはスプレーすることである。インクジェット

プリンティングあるいは分子線蒸着などの有方向蒸着が使用される。イオンミリング、およびレーザーアブレーションなどの有方向除去法は電極を決定するのに使用される。従来の合衆国特許出願番号第08/531,378号は自己マスキング基板

**を創り出すより複雑な方法を記載している。ヌクレポア® フィ**

ルターなどのようにマスクを通じて電極パターンを形成する商業利用できる均一多孔性プラスチック基板が単純で实际的だからである。他の多くの印刷およびリトグラフ技術も燃料電池および回路を多孔性プラスチック基板に配置することができる。インクジェットプリンティングは触媒伝導粒子あるいは電解質のスラリーとして形成される電極パターンおよび燃料電池電極にスプレーして使用される。触媒、伝導性電解質あるいは絶縁物質などのパターン化物質が燃料電池基板の表面に静電気で引きつけられる場合にはゼログラフィーも可能である。真空蒸気蒸着パターンを使用し次いで電気めっきあるいは負荷粒子を引きつけて厚くする方法の組合せは従来の蒸着からのパターンを構築するために使用される。フォトリソグラフィーおよび／もしくは電気化学工程も電極パターンを規定し形成するのに使用される。

### 平行化電解質

平行化誘電物質に固定される電解質を使用するユニークな特徴はそれが横方向の伝導性を持たないということである。反応物質の拡散は主として平行化された孔の方向に限定される。これら2種の性質は単一膜上の隣接燃料電池スタックの燃料電池システムに利点を与える。もし電解質が隣接燃料電池の間で電

気分離域の表面基質から除去されると、入換えルートは遮断される。も一つの変形は電池分離域は電極と電解質が加えられる前は基板プラスチックの非孔域に過

ぎない。食刻核粒子飛跡膜でそれを行う単純な方法は照射後および食刻前にこれらの領域を照射あるいは熱アニールしないかのいずれかである。平行化のも一つの特徴は無孔電極にピンホール欠損漏れがある場合に、燃料電池の横方向伸びが平行化のため直接電解質を通じて燃料電池に閉じ込められることである。これは酸化剤電極の破壊の度合を制約する。

#### 熱と水の交換

水を帯同する電解質燃料電池の特別な問題は、もしそれらが温度あるいは反応湿度の範囲で運転されると、電解質の含水量が変化するということである。これは電極を乾燥あるいは浸水させる電解質で電解質の次善の性能に導く。この問題を解決するために、熱と水の対向流交換器が使用される。熱水対向流交換器の設計は水透過性薄膜を熱交換エレメントとして使用する。熱と水の移動が高率で行われるためにこれらの膜は薄いものでなければならない。膜は構造的な完全性のために高強度マトリクスを使用する複合材料から作られる。マトリクスはナフィオン® あるいは硝酸セルロースなどの水分交換物質で含浸される。

非活性流燃料電池システムに関しては、もし空気に直接露出されると電解質が脱水する点以上の温度で運転するために水分含有フィルムが使用される。膜は酸素を透過し水分をより透過しないようにフィルムで電極をコーティングしあるいは空気マ

ニホールドを持つことで形成される。膜は無孔でありあるいは間欠的に孔を持つ。間欠的な孔は過剰な水分を逃すメカニズムを提供する。

#### 先細電極

電気伝導電極における金属の量は、もしも電極厚みが伝導のために最小の厚みから、電極が燃料電池から離れ次の隣接電池と接続する点まで先細にされていたなら、これらの薄層フィルム燃料電池の発明で最適化される。

#### 蒸気燃料の送達

移動部品を持たない小型燃料電池でメタノール燃料を送達する2個の主要な手段がある。第1は燃料を燃料電池電極に送るウィッキングを使用することである

。しかし液体ウィッキングは燃料と燃料電池電極の液体接触であることを必要とする。これは前にも記載した問題に導く。もし燃料が燃料電池電極に到達する前に蒸発すると、物理的接触の問題は排除される。使用されるものは燃料ボトルからの液体燃料の吸い出し、燃料電池近くの層への燃料のウィッキング、および次いで燃料電極の表面に到達するための疎水性マトリクスを経由する蒸気輸送の使用、の組合せである。空気電極が雰囲気冷却され拡散を通じてのみ酸素を供給されるこれらの低出力密度燃料電池にとっては、燃料蒸発拡散率は距離で0.1 mm乃至20 mm以上に十分速いものである。

#### 無孔電極

この発明では非常に薄い可撓性金属フォイルがプラスチック基板で支持される。これらのフォイル膜の実際的な使用は、直

接補給されるアルコール燃料電池において、一方で有効にイオン電流を伝導しながら電解質を通じてのメタノール拡散を遮断する必要を充たすことである。もしフォイルが必要なスループット率を充たすのに十分な薄さで作られるならば、金属フォイルはこの問題を解決する。薄層フォイル電極を形成するために、水素化学吸着を示す広い範囲の金属エレメントが多孔性基板あるいは直接固形電解質に蒸着される。孔のプラグギングは基板の孔の口径よりも厚い広角水素透過金属スパッタ蒸着で行われる。加えて金属フォイルは各種の性質を付与するために層内に構築される。200℃以下では、金属フォイルを通じるガスの拡散率の多くがフォイルの表面での化学吸着率により優先されるということが文献で注目される（フィールシュティヒ、1965年）。純粋水素燃料電池では、フォイルの両面でのプラチナなどの触媒表面層は電極を通じる水素のスループット率を増加する。直接メタノールおよび水素燃料電池に対して、膜の炭化水素燃料側は炭化水素分子およびその製品を無力化を避けるために触媒作用を及ぼしあるいは免疫である触媒をとり込まなければならない。一方炭化水素燃料に対向するフォイル膜の側では表面触媒は炭化水素に対して最適化される。フォイルの設計で他に考慮されることは、非常に高い水素透過性を持つPdなどのような適切な透過性を持つ遷移元素の多くがそれらが脱水するにつれて拡大しその結果クラックを起こす



という不利な点を持つことである。この性質は金属水素水和物の間ではかなり共通している。かくして、変形作用およびクラッキングの問題を避けるために、薄層フォイルは例えば現在

水素浄化剤で使用される(77:23)パラジウム合金などのように合金にされる。も一つの選択肢は層内にフォイル膜を形成することである。層設計において、内部層は低均衡濃度の水素を有し、クラックを起こさず、また構造的隔膜である。一方外部層は速い表面交換反応率と表面域を提供する。層状化のも一つの特徴は、蒸着された第1層が水素イオンの高い透過性を持ち、一方もし第2構造層が低い透過性しか持たないなら、第1層は全構造膜が拡散膜として有効に使用されるようにする横方向拡散ルートを基板孔に提供するということである。

一つの例として、電流検査が15nm孔口径を持つヌクレボ

#### **ア® フィルターで行われる。これらの膜はまず3.7nmPd**

フィルム、第2に15nmPtフィルムおよび第3に7.5nmPdフィルムでスパッタコートされた。これらの厚みおよび幾何学形状で、膜は23℃で10-20mA/平方センチメートルに等しい室温での水素拡散率を有している。小型雰囲気冷却拡散反応物質供給燃料電池としてこれは望ましい電流密度範囲にある。これらの膜はまたこれまでの12ミクロン厚膜に比べて安価であり、何故ならそれは厚さ1/800と非常に少ない量の材料を使用するからである。このアセンブリーはメタノール燃料電池を構成し、それは膜の燃料側の電極でメタノールを電気触媒的にクラックし、次いで水素イオンあるいは水素ガスを濾過し、他の電極にあるフィルター膜の他の側にある燃料電池を形成する。メタノールクラッキング電気触媒工程は水の追加を必要とする。かくして2個の電解質を持つことが必要であり、1個は無孔金属フォイルの燃料側にあり、他方は酸素

側にある。これは酸素燃料電池電極に対するメタノールと水の交差を妨げる。

#### 異なった電解質

電解質を分離する燃料電池内の無孔金属フォイルバリアは、2個の異なった電解質が無孔金属フォイルバリアのどちらかの側に配置されることを可能にする。

一つの配列は、メタノール  
**燃料電極をナフイオン®を用いて水素のみの無孔電極にし、硫**

酸を燃料側にまた水酸化カリウム電解質を無孔電極の酸素側にすることである。  
酸素の反応速度は水酸化カリウム電解質でより適しており、一方酸性電解質は燃料側で使用され、何故なら水酸化カリウム電解質はもしそれが燃料側で使用されたなら炭酸塩を形成するからである。

化学量論燃料送達

電池内の無孔電極あるいはバリヤは水と同じくメタノール燃料のイオン抵抗を遮断する。炭化水素が水素および二酸化炭素に改質されている炭化水素燃料にとって、この工程のための酸素の供給源は典型的に水である。従来の燃料電池において、水は電解質内で再循環されるか排出産物から取り戻すかしなければならない。もし燃料電池を通じて水のイオン運動が遮断されるならば、単に燃料と水との化学量論的混合物を加えることが燃料改質反応をバランスさせるのに十分である。例えば、メタノール燃料を電気触媒的に使用する燃料電池では、メタノールが触媒的に酸化され二酸化炭素と水素を形成できるようにメタノールの各分子に対し水1分子の化学量論的燃料混合物を持つ必要がある。かくしてメタノールと水混合物の1:1モル混合

物が燃料電池排出ガスから水分を取り戻す必要を排除する。水分回収と循環がなければ、直接のメタノール燃料電池は著しく単純なものになる。酸素電極だけが脱水でその性能を減少しないように十分な製品水を保持する必要がある。燃料電極は水と燃料を同じ比率で使用する。かくして燃料電池が水から出ると、燃料電極も燃料から出る。

バルク電気接続

これら燃料電池の一つの特徴は、明らかな最適バルク電流キャリアーが金であるということである。バルク金属導体として価値のいい数字は密度および単位量当たりコストで割った伝導の商が高いことである ( $\text{cm}^2/\text{オーム} \cdot \$$ )。燃料電池の典型的な腐食環境に耐久力のあるもっとも費用効率的なバルク電気導体を探索した場合、金のコスト、高い伝導性および不活性が数字でその価値をプラチナの

約4倍与えている。Pt金属グループの他の各種の導体は以下のようにランクされた：Ru 2600, Pd 1900, Au 1500, Ir 900、次いでPt 390 ( $\text{cm}^2/\text{オーム}\cdot\text{\$}$ )。ルテニウムが元素のプラチナグループの価値でもっとも高い数字を与えられたが、延性が低く表面の酸化が起こり得るため多用途の面で金より劣る。水和によるクラッキングを避けるため、他の物質との組合せでパラジウムも効率的なバルク金属導体として研究されている。パラジウムは更に水素透過性電極およびバルク導体として有利に使用される。金の高い伝導性は燃料電池のコーティングを極端に薄くし電極の活性表面域の損失が殆どないものにする。金フィルムはそれが水素の透過性の低さの故に水素拡散

バリヤとして使用される。この性質は、燃料拡散漏れが主な損失メカニズムである所では低放電率電池効率を改善するために使用される。もし燃料電池電極が、電池から電池への平均電気行程を短く保つために寸法で小型に保たれる場合には、電池を形成するのに必要な金の量は金フィルムが表面で良導体となる遷移点近くにある。遷移は金の厚みが5 nmの値で生じる。価値の数字順での他の耐腐食性金属はMo 654,000、V 463,000、W 328,000、Ti 100,000、Ta 65,000およびC 16,000 ( $\text{cm}^2/\text{オーム}\cdot\text{\$}$ )である。この表は純粋元素を通して続く。Mo<sub>2</sub>, Si<sub>3</sub>, およびWCなどの合金も検討されてきている。これらの耐腐食性は価値の高い数字を持つが、それはまた蒸着が難しく、燃料電池環境で腐食することがあり、より厚いフィルムを必要とし、あるいは表面酸化の故で接触を欠陥のあるものにする。

#### 燃料電池／バッテリーおよびもしくはエレクトロニクス

パワーパックの電気システムは燃料電池に電氣的に並行にあるいは電流電圧制御装置を通して接続されるバッテリーを持つように配列される。バッテリーと燃料電池は、バッテリーに充電した燃料電池の燃料消費を減少しあるいは単に柔軟なエネルギー調達を持つために電圧および電流源に接続される。製品の充電能力を持つ燃料電池の変形はエネルギーを充電する燃料電池に電気分解を使用する。電圧を変える外部適用も燃料電池触媒面を清潔にするのに役立つ。最終製品はそのエネルギーを燃料あるいは電気充電もしくは同時に両方から誘導する出力装

置である。充電源はDC電源あるいはパルス源からのものである。光電池エネルギー源として使用される。も一つの概念は燃料電池を任意の波形直流発電機と接続し使用者に望ましい交流電力を生産する。も一つのハイブリッド電力計画はフライホイールを燃料電池の低い連続出力で電圧を加え、次いで需要に合った電力を引き出すことである。これは加速および丘を昇るための高出力サージ電圧を必要とするが、平均出力需要がサージ需要のほんの一部でよい自動車などの装置でうまく作動する。

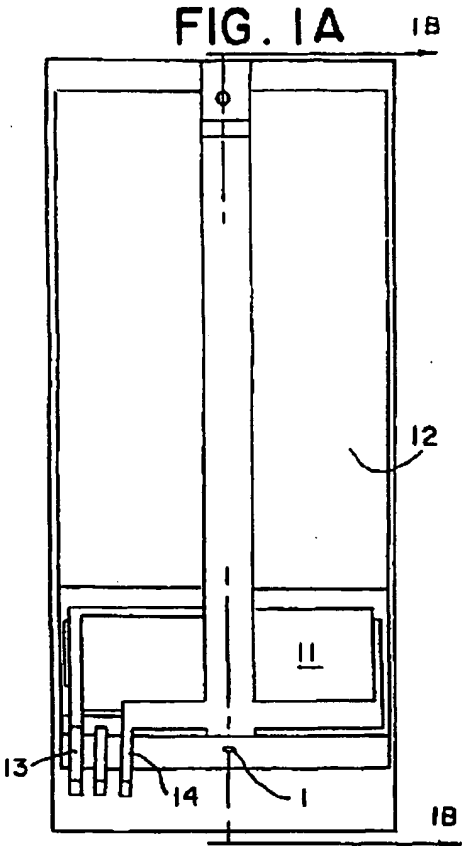
#### 電源の適用性

この燃料電池パワーパックに対しては途方もなく大きい数の実際の用途が存在する。前に示されかつ説明されたユニークな設計はセル電話、ポータブルラジオ発信および受信器用に電力を供給することを標的としたものである。これらの適用はニッケル、カドミウムバッテリーに10乃至100倍の範囲の因子で勝るメタノールのような炭化水素燃料の単位量当りより高いエネルギーにより再充填バッテリーに勝る実質的な向上を認識する。論理的には人間の住むのに適した条件で運転される殆ど全てのポータブル電気出力用途はこの新しい燃料電池パッケージを組み込まれる。制約は燃料電池コストが最大出力と共に増加し、また酸素あるいは他の酸化剤の源となるものが必要なことである。燃料電池を必要とするまでそれを保存するためには、燃料電池から酸素を取り上げるために空気を通さないコンテナ内に燃料電池を入れてシーリングするだけで簡単である。新しい燃料電池の発明は水素酸素燃料電池に関連して説明

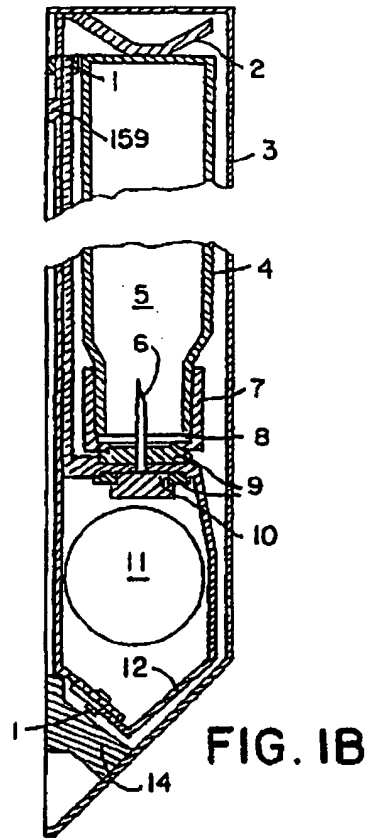
されてきたが、水素塩素燃料電池などの燃料および酸化剤源の他の変形も可能である。無孔電極は塩素ガス拡散を遮断するのにかなり役に立つ。

この発明は特異的な実施例と関連して記載されてきたが、この発明の修正および変形したものも下記の請求の範囲で定義されるこの発明の範囲から離れることなく構築することができる。

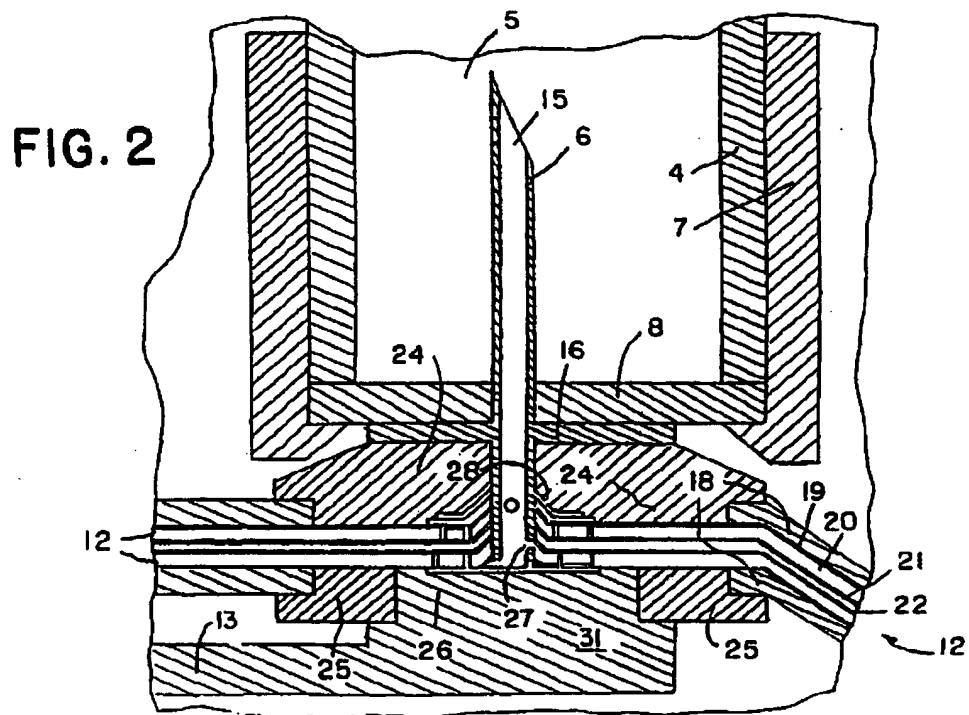
【図 1】



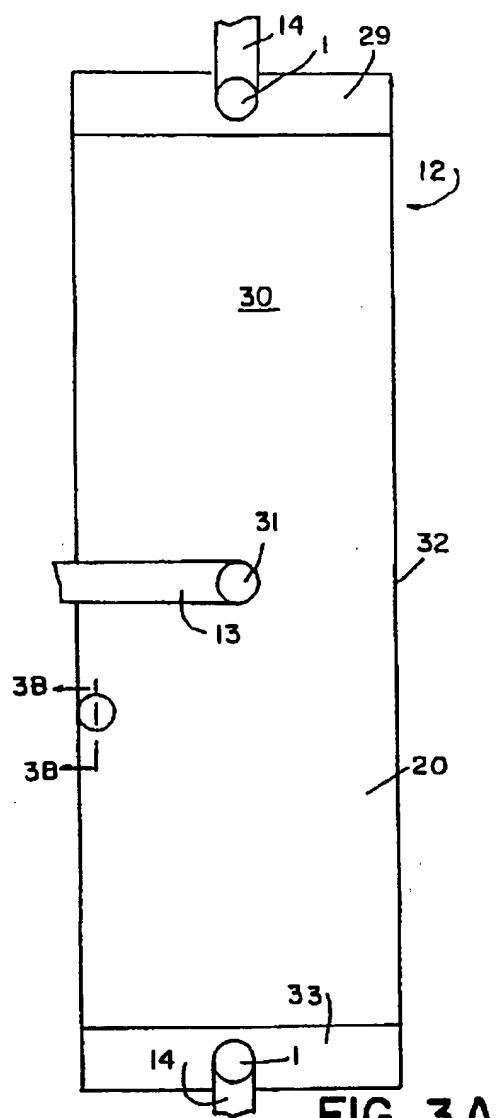
【図 1 B】



【図 2】



【图 3】



**FIG. 3A**

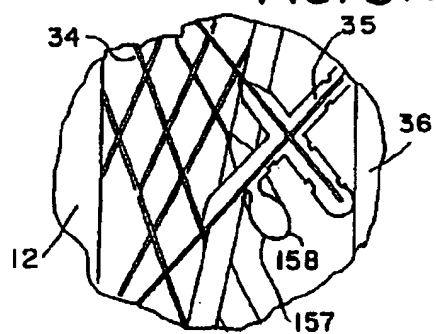
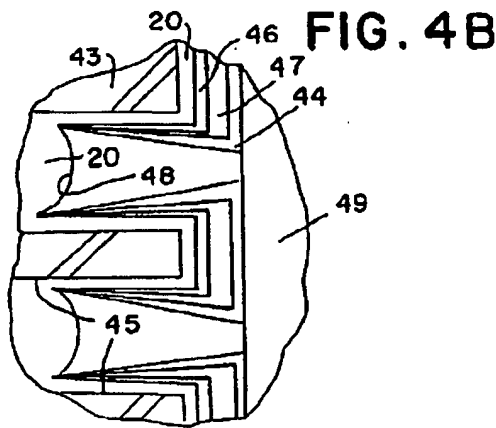
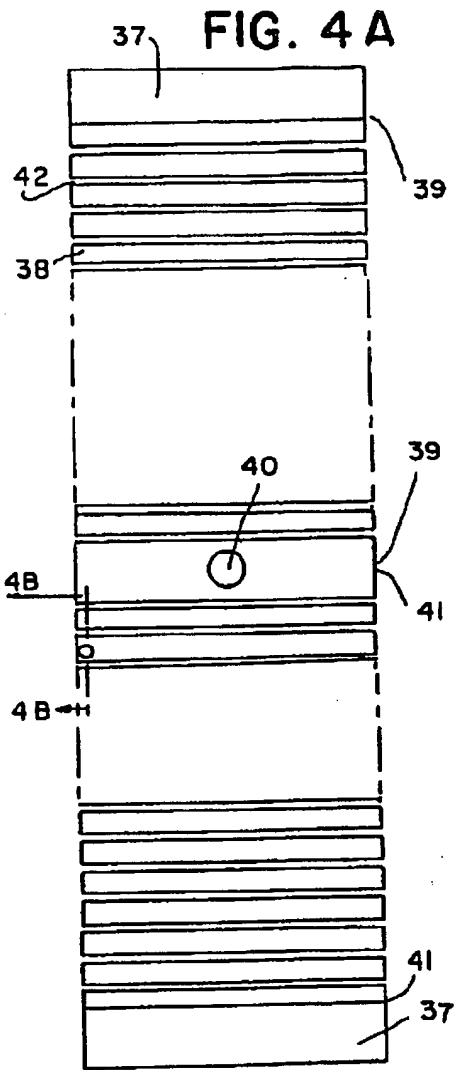


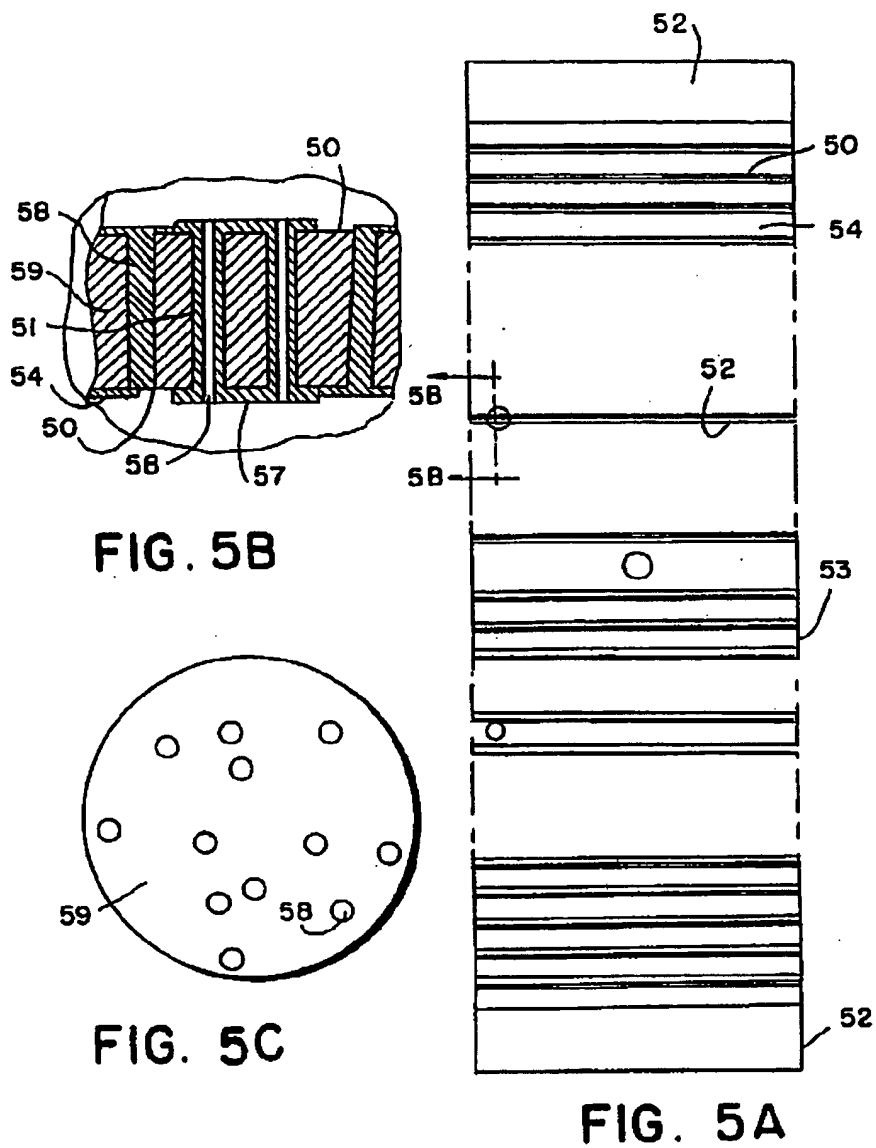
FIG. 3B



【图 4】



【図5】



【图 6】

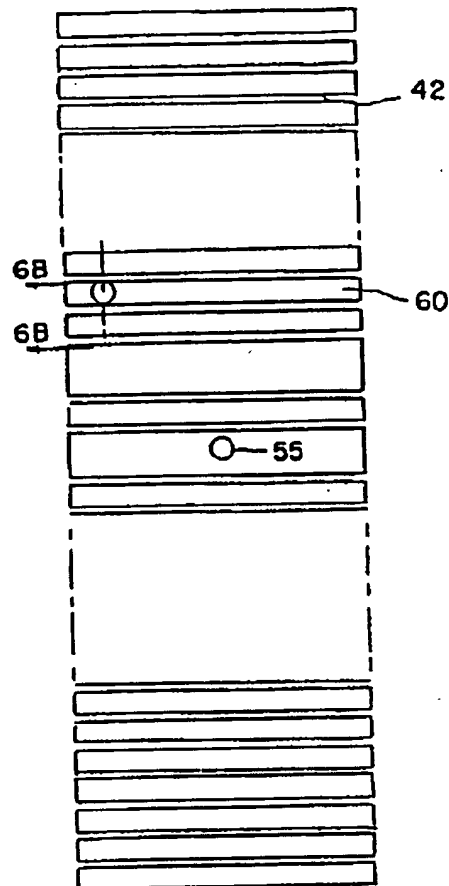


FIG. 6A

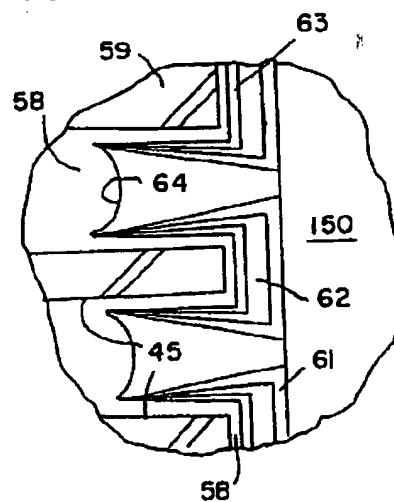


FIG. 6B

【図 7】

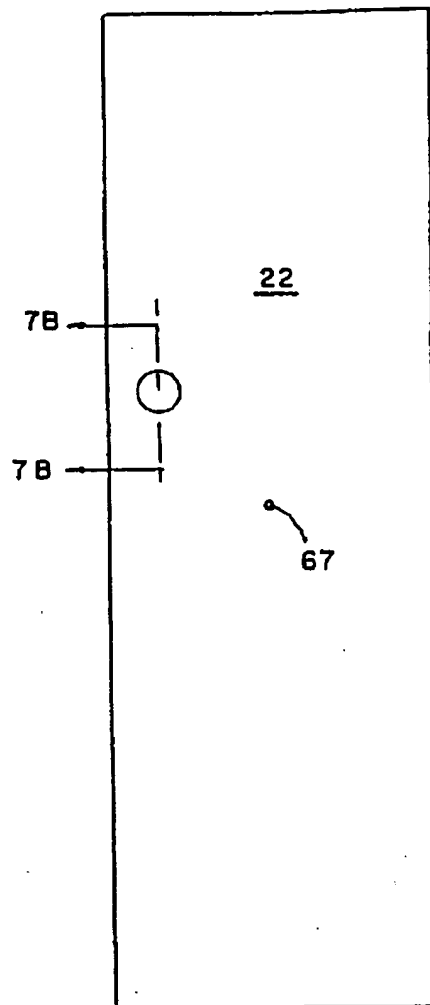


FIG. 7A

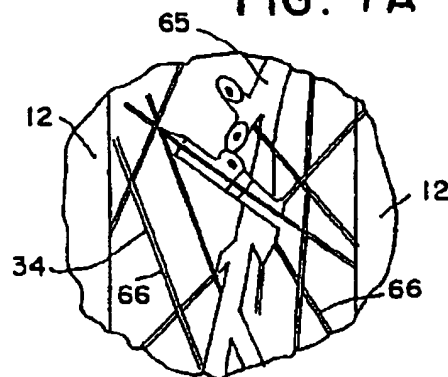


FIG. 7B

【图 8】

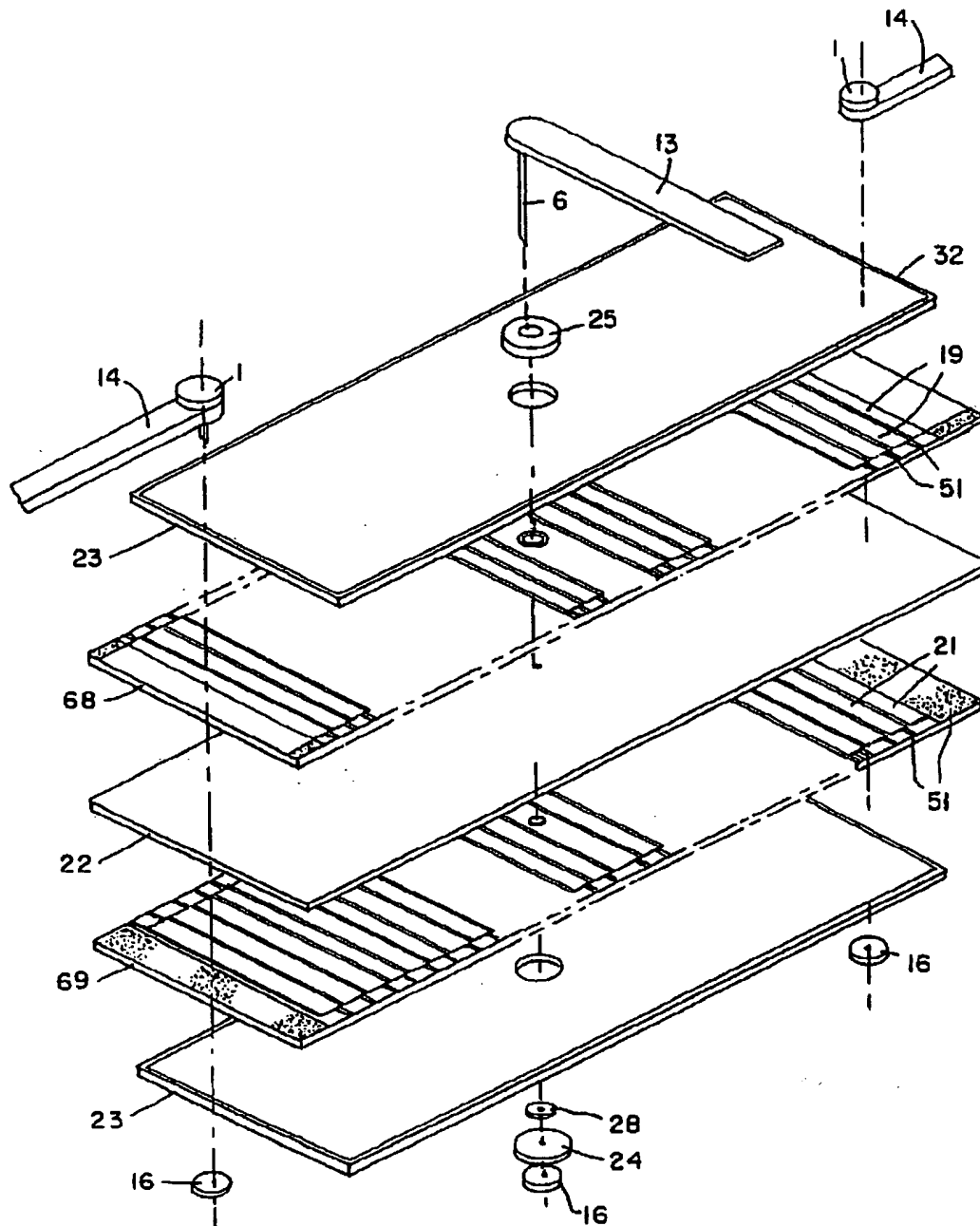
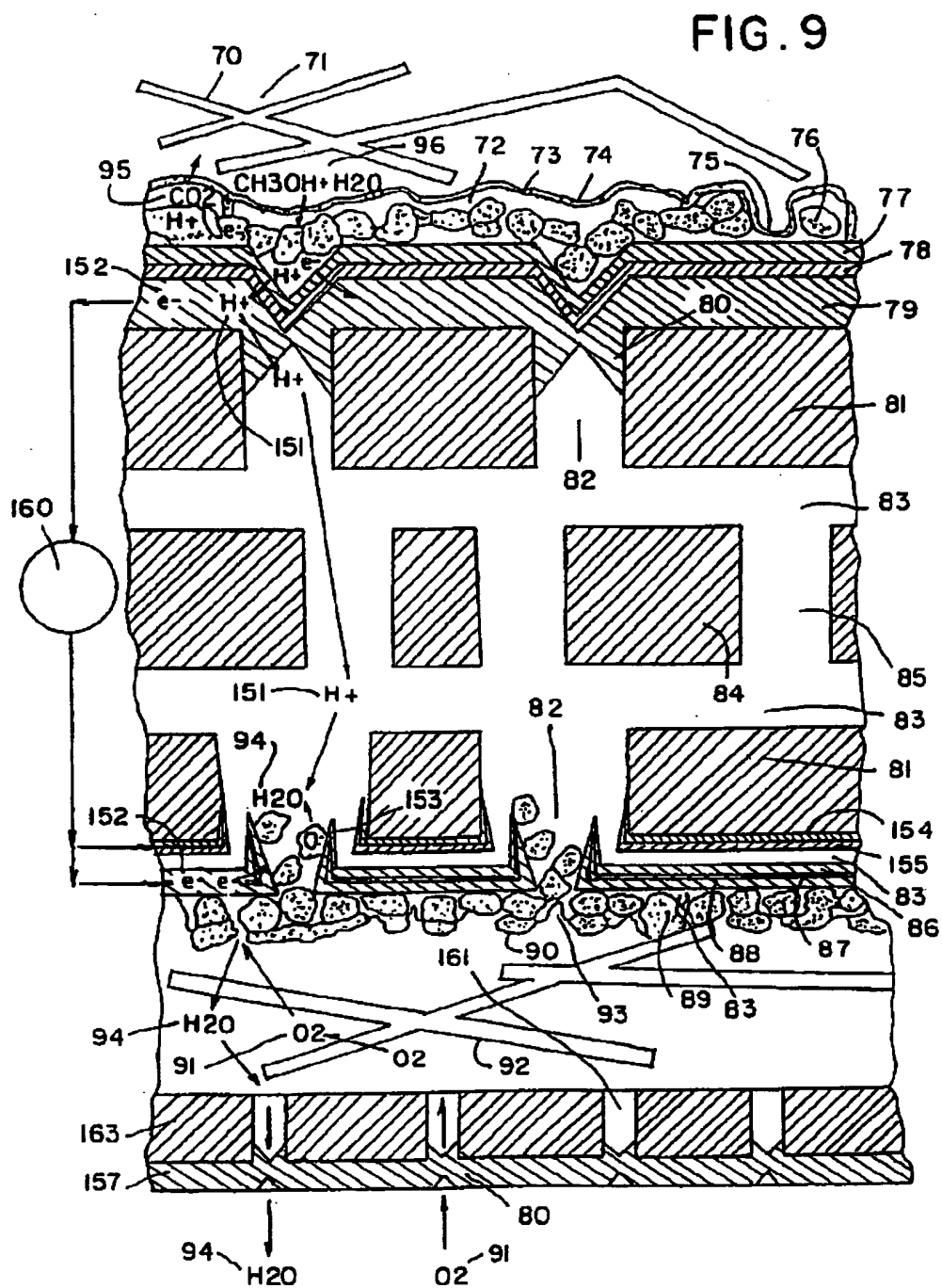


FIG. 8

【図 9】



【図 10】

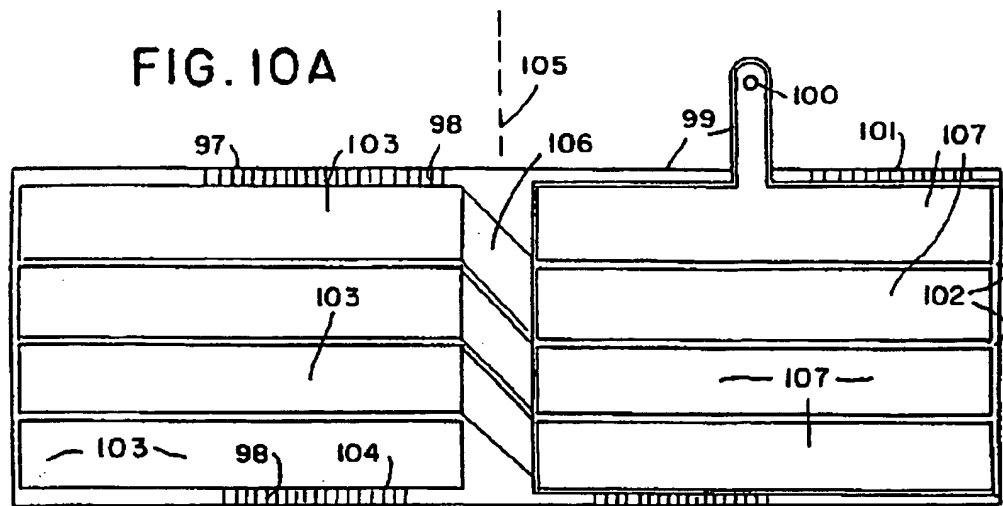
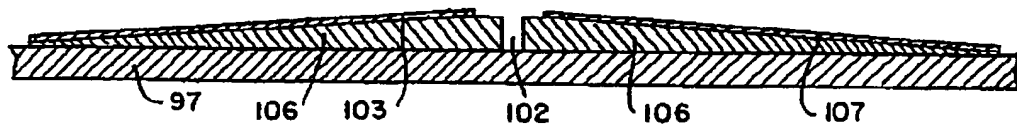
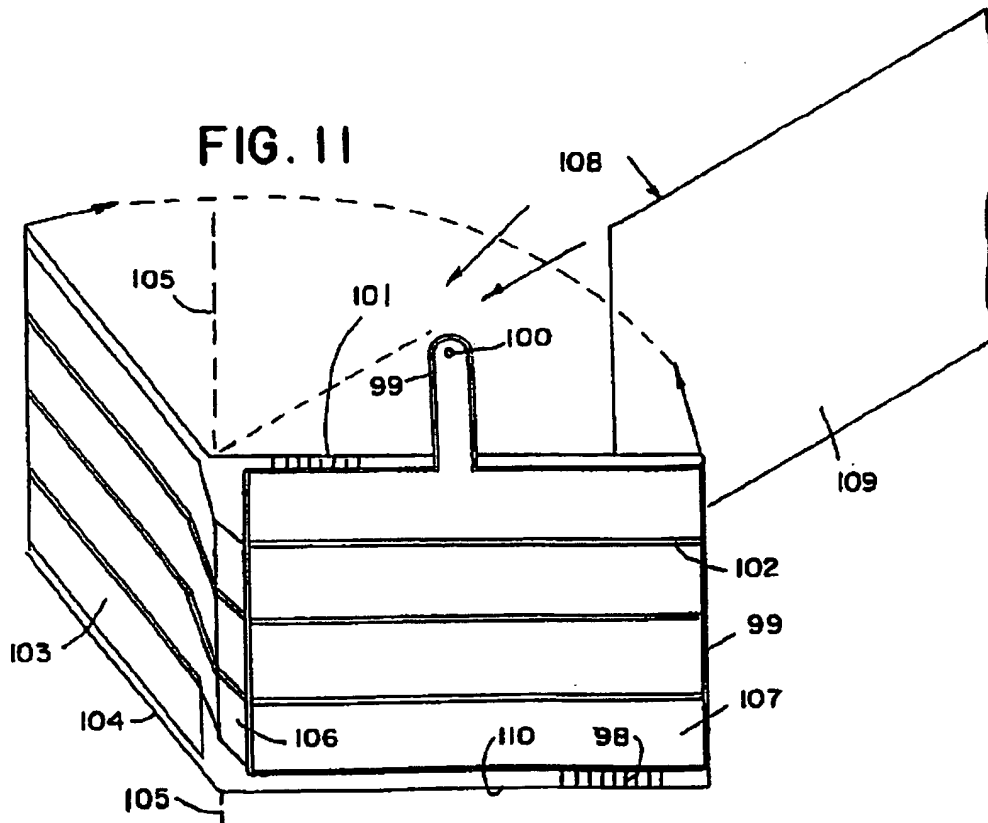


FIG. 10B

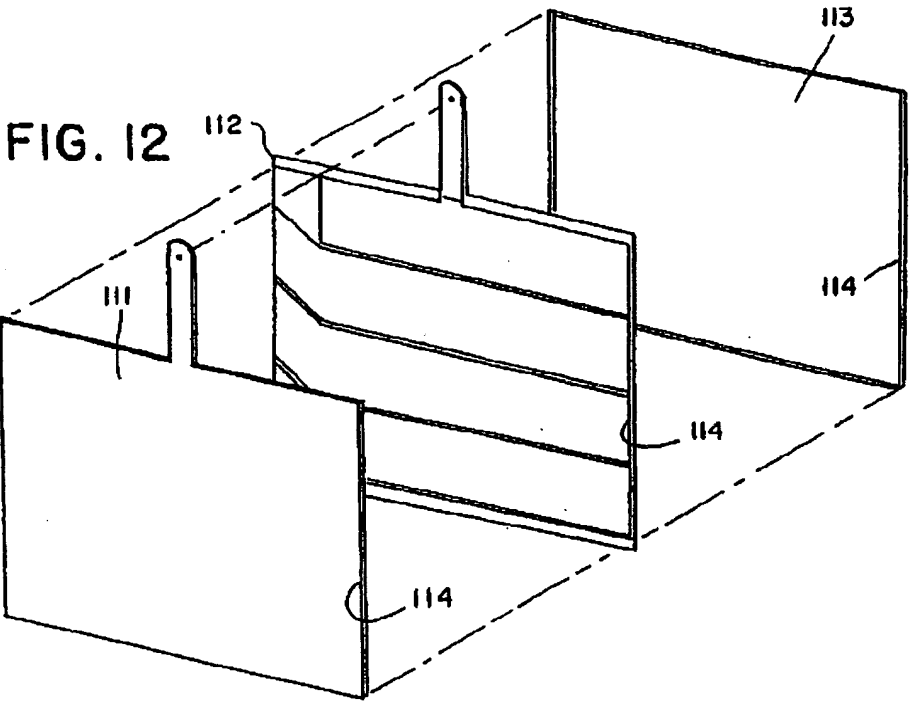


【图 11】

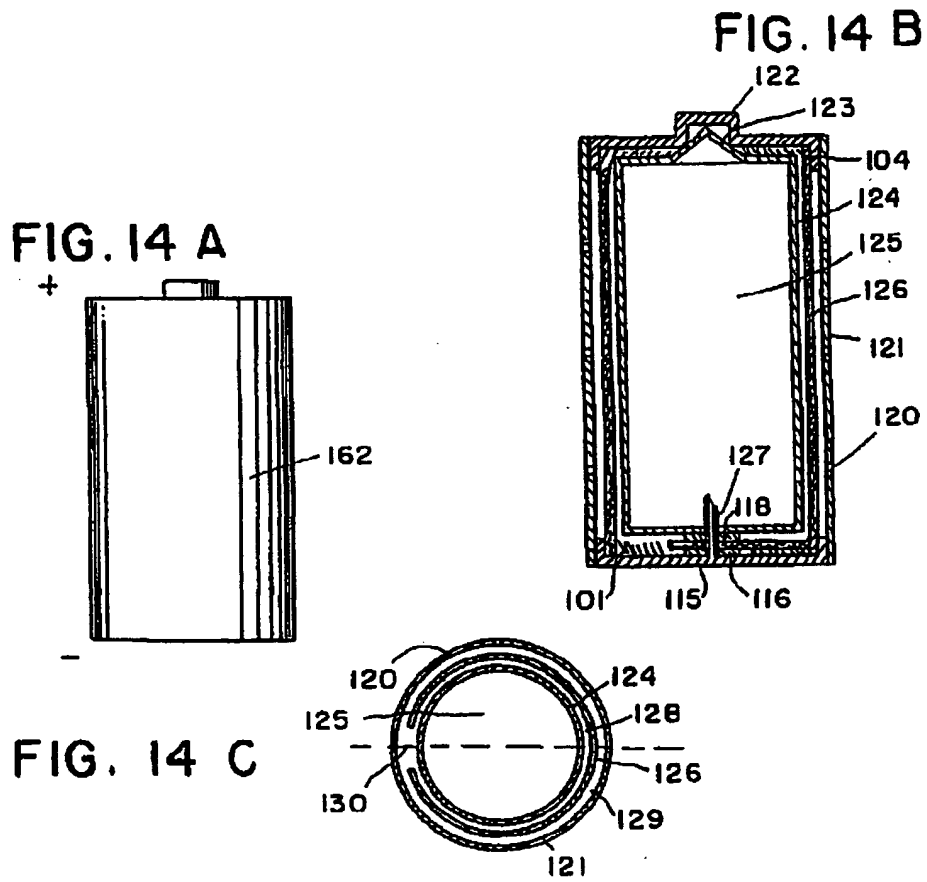




【図 1 2】



【図14】



【図13】

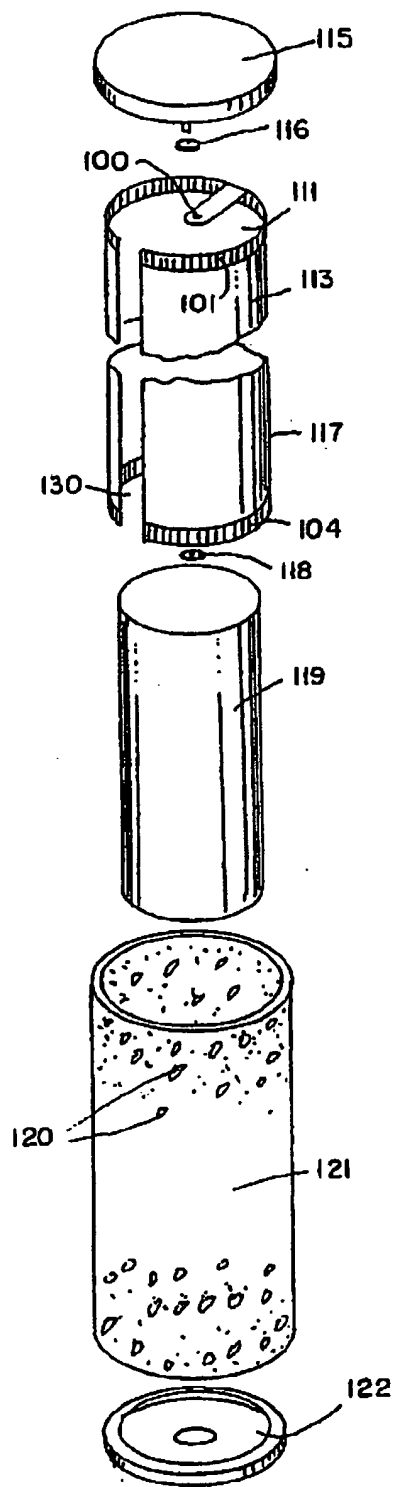
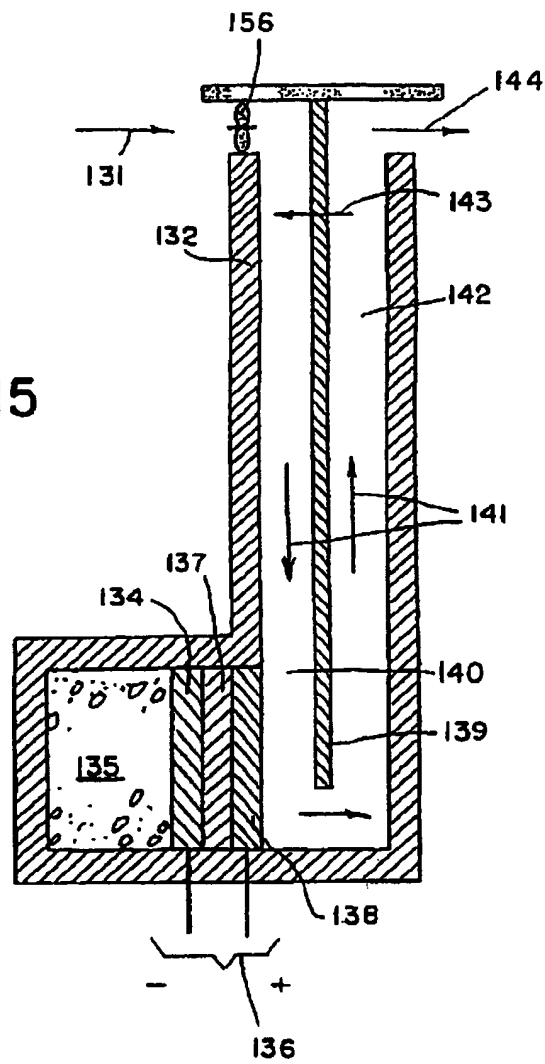


FIG. 13

【図15】

FIG. 15



## 【国際調査報告】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.  
PCT/US98/01693

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> IPC(6) : Please See Extra Sheet. US CL : 429/19, 26, 34 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) U.S. : 429/19, 26, 34, 38, 39 Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US, 5,252,410 A (WILKINSON et al) 12 October 1993.	NONE
A	US, 5,486,428 A (GARDNER et al) 23 January 1996.	
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "B" earlier document published on or after the international filing date "I" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" documents referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" documents published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "Z" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 10 APRIL 1998		Date of mailing of the international search report 26 MAY 1998
Name and mailing address of the ISA/US Commissioner of Patents and Trademarks Box PCT Washington, D.C. 20231 Facsimile No. (703) 305-3230		Authorized officer: <i>Anthony A. Skapars</i> ANTHONY A. SKAPARS Telephone No. (703) 308-2773

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/US98/01693

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER:**

IPC (6):

H01M 8/04

---

フロントページの続き

(81)指定国 EP(AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AP(GH, GM, KE, LS, MW, SD, SZ, UG, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GE, GH, GM, GW, HU, ID, IL, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZW